

## LE JOURNAL DE PHYSIQUE

ET

## LE RADIUM

## SUR L'ÉCOULEMENT RELATIF D'UN FLUIDE

Par J. E. VERSCHAFFELT,

(La Haye, Pays-Bas).

**Sommaire.** — Je montre comment, de façon générale, un observateur mobile peut formuler les lois fondamentales de la thermomécanique des fluides, en partant de celles formulées par un observateur fixe. J'applique ensuite mes considérations générales à deux exemples concrets.

**1. Introduction.** — Dans une note récente [1], j'ai posé la question de savoir s'il est possible de déduire les lois fondamentales de la thermomécanique des fluides, telles que doit les écrire un observateur mobile, lié à un système d'axes mobiles  $O'X'Y'Z'$ , de celles formulées par un observateur immobile, lié à un système d'axes  $OXYZ$ , fixe dans l'espace. Je crois, actuellement, pouvoir répondre affirmativement à cette question, en partant, comme postulat du système de deux relations

$$\left(\frac{\partial a}{\partial t}\right)' = \frac{\partial a}{\partial t} + (\mathbf{v} \cdot \text{grad } a) \quad (1)$$

et

$$\left(\frac{\partial (ca)}{\partial t}\right)' = \frac{\partial (ca)}{\partial t} + \text{div}(c\mathbf{v}), \quad (2)$$

où  $(\partial a / \partial t)'$  et  $\partial a / \partial t$  représentent respectivement les variations (dérivées par rapport au temps) locales d'une grandeur d'état spécifique (c'est-à-dire relative à l'unité de masse), fonction du temps et des coordonnées, constatées par l'observateur mobile et par l'observateur fixe ;  $\mathbf{v}$  est la vitesse d'entraînement en un point de fluide, définie par l'équation

$$\mathbf{u} = \mathbf{u}' + \mathbf{v}, \quad (3)$$

où  $\mathbf{u}$  et  $\mathbf{u}'$  sont les vitesses d'écoulement, l'une absolue, l'autre relative, observées en un même point par les deux observateurs. La grandeur  $ca$  est, ce que j'appelle la grandeur  $a$  concentrée, c'est-à-dire rapportée à l'unité de volume ;  $c$  étant la concentration, la masse par unité de volume.

Le mouvement le plus général du système d'axes mobile se compose, évidemment, d'un déplacement de son origine  $O'$  dans le système d'axes fixes, avec une vitesse

$$\mathbf{v}_0 = \frac{d\mathbf{r}_0}{dt}, \quad (4)$$

et d'une rotation, avec une vitesse angulaire  $\omega_0$ , variable, en général, avec le temps, autour d'un axe  $O'R'$ , de direction généralement variable dans l'espace. Dans ces conditions on aurait

$$\mathbf{v} = \mathbf{v}_0 + \omega_0 [\mathbf{a} \times \mathbf{r}'] \quad (5)$$

où  $\mathbf{a}$  est un vecteur unité dirigé suivant  $O'R'$  ;

$$\mathbf{r}' = \mathbf{r} - \mathbf{r}_0 \quad (5')$$

est le vecteur local d'un point du fluide par rapport à l'origine mobile  $O'$ .

Mais, dans les applications, je me bornerai à considérer des cas où  $\mathbf{r}_0 = 0$ , c'est-à-dire des cas où l'origine reste fixe, et  $\mathbf{a} = \mathbf{z}$ ,  $\mathbf{z}$  étant un vecteur unité dirigé suivant l'axe fixe  $OZ$ . Le système d'axes mobile tourne donc simplement autour de l'axe  $OZ$ . Je supposerai, d'ailleurs, que  $\omega_0$  est une constante, de sorte que

$$\mathbf{v} = \omega_0 [\mathbf{z} \times \mathbf{r}]. \quad (6)$$

en quel cas

$$\text{div } \mathbf{v} = \omega_0 \{(\mathbf{r} \cdot \text{rot } \mathbf{z}) - (\mathbf{z} \cdot \text{rot } \mathbf{r})\} = 0. \quad (6')$$

Si le fluide est mixte, un mélange de  $n$  constituants simples, homoléculaires, le postulat (1) est supposé s'appliquer à toute fonction d'état spécifique  $a_v$ , relative à un quelconque (le  $v$ -ième) des constituants. Alors  $a$  peut être considéré comme une fonction moyenne, définie par

$$a = \sum x_v a_v, \quad \text{où} \quad x = \frac{c_v}{c}, \quad \text{avec} \quad c = \sum c_v. \quad (7)$$

est le titre du  $v$ -ième constituant, dont  $c_v$  est la concentration.

Si  $\mathbf{u}$  et  $\mathbf{u}'$  sont respectivement les vitesses d'écoulement, absolue et relative, du  $v$ -ième constituant, la vitesse d'ensemble (appelée aussi vitesse bary-



centrique) est donnée, pour chacun des deux observateurs, par

$$\mathbf{u} = \Sigma x_v \mathbf{u}_v \quad \text{et} \quad \mathbf{u}' = \Sigma x_v \mathbf{u}_v' = \Sigma x_v (\mathbf{u}_v - \mathbf{v}) = \mathbf{u} - \mathbf{v}; \quad (8)$$

alors

$$\mathbf{u}^d = \mathbf{u}_v - \mathbf{u} = \mathbf{u}_v' - \mathbf{u}' \quad (9)$$

est la vitesse de diffusion, tant relative qu'absolue, du  $v$ -ième constituant.

En vertu du postulat (1), les deux variations, ou dérivées spatiales,

$$\frac{da}{dt} = \frac{\partial a}{\partial t} + (\mathbf{u} \cdot \text{grad } a) \quad \text{et} \quad \left(\frac{da}{dt}\right)' = \left(\frac{\partial a}{\partial t}\right)' + (\mathbf{u}' \cdot \text{grad } a), \quad (10)$$

l'une absolue, l'autre relative, sont liées entre elles par la relation

$$\begin{aligned} \left(\frac{da}{dt}\right)' &= \frac{\partial a}{\partial t} + (\mathbf{v} \cdot \text{grad } a) + (\mathbf{u}' \cdot \text{grad } a) = \frac{\partial a}{\partial t} \\ &+ (\mathbf{u} \cdot \text{grad } a) = \frac{da}{dt}. \end{aligned} \quad (11)$$

Les deux dérivées spatiales sont donc égales. Il en est de même, d'ailleurs, pour les dérivées

$$\begin{aligned} \frac{da_v}{dt} &= \frac{\partial a_v}{\partial t} + (\mathbf{u}_v \cdot \text{grad } a) \\ \text{et} \quad \left(\frac{da_v}{dt}\right)' &+ \left(\frac{\partial a_v}{\partial t}\right)' + (\mathbf{u}_v' \cdot \text{grad } a). \end{aligned} \quad (12)$$

Remarquons enfin, qu'en vertu de la loi de masse (voir § 2), l'observateur fixe écrira

$$\begin{aligned} \frac{\partial (ca)}{\partial t} + \text{div}(ca\mathbf{u}) &= c \frac{\partial a}{\partial t} + a \frac{\partial c}{\partial t} + a \text{div}(c\mathbf{u}) + c(\mathbf{u} \cdot \text{grad } a) \\ &= c \left\{ \frac{\partial a}{\partial t} + (\mathbf{u} \cdot \text{grad } a) \right\} = c \frac{da}{dt}, \end{aligned} \quad (13)$$

où, d'ailleurs,  $c$ ,  $a$ , et  $\mathbf{u}$  peuvent être remplacés par  $c_v$ ,  $a_v$  et  $\mathbf{u}_v$ . Quant à l'observateur mobile, il pourra écrire, de même,

$$c \left(\frac{da}{dt}\right)' = \left(\frac{\partial (ca)}{\partial t}\right)' + \text{div}(ca\mathbf{u}') = c \frac{da}{dt}. \quad (13 a)$$

Après l'exposé de ces généralités, nous allons examiner successivement les diverses lois fondamentales de la thermomécanique des fluides, écrites par les deux observateurs.

**2. La loi de masse.** — La loi de masse, ou loi de continuité, étant, dans le cas d'un fluide simple,

$$\frac{\partial c}{\partial t} = -\text{div}(c\mathbf{u}) \quad (14 a)$$

pour l'observateur fixe, il résulte immédiatement du postulat (2), en y posant  $a = 1$  (masse par unité de masse), que pour l'observateur mobile

$$\left(\frac{\partial c}{\partial t}\right)' = -\text{div}(c\mathbf{u}) + \text{div}(c\mathbf{v}) = -\text{div}(c\mathbf{u}'). \quad (14 b)$$

Cela signifie que la loi de masse reste valable pour un observateur mobile, quel que soit son mouvement ; ce qui était, en effet, à prévoir.

D'ailleurs, dans le cas où le fluide est mixte, on peut, encore une fois, remplacer dans (14), pour chacun des constituants,  $c$  par  $c_v$  et  $\mathbf{u}$  par  $\mathbf{u}_v$  ; alors  $u$  est, de nouveau, la vitesse d'ensemble, définie par (8).

Le développement de (2) donne

$$\begin{aligned} c \left(\frac{\partial a}{\partial t}\right)' + a \left(\frac{\partial c}{\partial t}\right)' &= c \left(\frac{\partial a}{\partial t}\right)' - a \text{div}(c\mathbf{u}') = \\ c \frac{\partial a}{\partial t} - a \text{div}(c\mathbf{u}) + a \text{div}(c\mathbf{v}) + c(\mathbf{v} \cdot \text{grad } a). \end{aligned}$$

d'où résulte l'équation (1). On voit ainsi que, si l'on regarde la relation (2) comme un postulat (dont on trouvera un jour, j'espère, la démonstration), la relation (1), peut être érigée en théorème.

De (13) on déduit, vu les définitions (10),

$$\frac{dc}{dt} = -c \text{div } \mathbf{u} \quad \text{et} \quad \left(\frac{dc}{dt}\right)' = -c \text{div } \mathbf{u}', \quad (15)$$

de sorte que

$$\left(\frac{dc}{dt}\right)' - \frac{dc}{dt} = c \text{div } \mathbf{v}, \quad (16)$$

ce qui ne s'annule, comme on voit, que si  $\text{div } \mathbf{v} = 0$ . Les dérivées spatiales  $dc/dt$  et  $(dc/dt)'$  ne sont donc pas égales dans tous les cas, ce qui semble être en contradiction avec (11) ; mais cela tient, évidemment, à ce qu'une concentration n'est pas une grandeur spécifique.

Par contre,

$$\begin{aligned} \frac{dx_v}{dt} &= \frac{d}{dt} \left(\frac{c_v}{c}\right) = \frac{1}{c} \left(\frac{dc_v}{dt} - x_v \frac{dc}{dt}\right) = -x_v (\text{div } \mathbf{u}_v - \text{div } \mathbf{u}) = \\ &= -x_v \text{div } \mathbf{u}_v^d = \left(\frac{dx_v}{dt}\right)', \end{aligned} \quad (17)$$

et

$$\begin{aligned} \frac{dx_v}{dt} &= \frac{dx_v}{dt} - (\mathbf{u}_v \cdot \text{grad } x_v) = \left(\frac{dx_v}{dt}\right)' - (\mathbf{u}_v' \cdot \text{grad } x_v) - \\ &- (\mathbf{v} \cdot \text{grad } x_v) = \left(\frac{\partial x_v}{\partial t}\right)' - (\mathbf{v} \cdot \text{grad } x_v). \end{aligned} \quad (18)$$

En effet, un titre est une grandeur spécifique ; c'est, notamment, la masse d'un constituant du mélange par unité de masse de l'ensemble.

**3. La loi de l'entropie.** — Supposons, d'emblée, que nous ayons affaire à un fluide mixte.

L'observateur fixe formule la loi de l'entropie en écrivant

$$\frac{\partial (cS)}{\partial t} = \sum \frac{\partial (c_v S_v)}{\partial t} = \frac{q}{T} - \text{div} \left(\frac{\mathbf{W}}{T}\right) - \Sigma \text{div}(c_v S_v \mathbf{u}_v) + \sigma, \quad (19)$$

ou bien

$$\begin{aligned} T \frac{\partial (cS)}{\partial t} &= Q - (\mathbf{W} \cdot \mathbf{A}_{th}) = T \text{div}(cS\mathbf{u}) - \\ &- T \Sigma \text{div}(c_v S_v \mathbf{u}_v^d) + \varepsilon, \end{aligned} \quad (19 a)$$

ou

$$Q = q - \text{div } \mathbf{w} \quad (20)$$



est l'effet calorifique, composé de la chaleur fournie par rayonnement, par unité de volume et de temps, et de la chaleur fournie par conduction. L'intensité du flux de chaleur par conduction est

$$\mathbf{w} = k \mathbf{A}_{th}, \quad \text{où} \quad \mathbf{A}_{th} = -\text{grad} \log T \quad (21)$$

est l'affinité thermique. Le terme  $\varepsilon = \sigma T$  représente l'énergie dissipée, par unité de volume et de temps, par les processus irréversibles dont le fluide est le siège;  $\sigma$  étant la production d'entropie.

En vertu de (2) l'observateur mobile pourra écrire

$$T \left( \frac{\partial(cS)}{\partial t} \right)' = Q - (\mathbf{w} \cdot \mathbf{A}_{th}) - T \text{div}(cS\mathbf{u})' - T \Sigma \text{div}(c_v S_v \mathbf{u}_v') + \varepsilon. \quad (22)$$

avec le même effet calorifique et la même dissipation d'énergie, car ces effets sont indépendants de l'état de repos ou de mouvement de l'observateur. Quel que soit, donc, son mouvement, l'observateur mobile formulera la loi de l'entropie comme s'il était fixe; ce qui est, me semble-t-il, fort compréhensible.

Remarquons encore, qu'en vertu de la transformation (14) et eu égard à (12), la loi de l'entropie (19) peut être mise sous la forme

$$T \Sigma c_v \left( \frac{dS_v}{dt} \right)' = T \Sigma c_v \frac{dS_v}{dt} = Q - (\mathbf{w} \cdot \mathbf{A}_{th}) + \varepsilon. \quad (23)$$

Pour éviter des complications inutiles, nous supposons qu'il ne s'opère pas de transformations moléculaires dans le fluide mixte. D'ailleurs, s'il s'en produisait, cela n'aurait d'autre conséquence, que d'ajouter des termes à l'énergie dissipée; et ces termes seraient les mêmes pour les deux observateurs. Il en serait de même, aussi, de la modification, qui en résulterait dans la loi de masse.

**4. La loi de force.** — Pour l'observateur fixe, l'équation dynamique du mouvement d'un fluide simple, de faible viscosité, peut s'écrire, en négligeant des termes provenant du frottement interne,

$$\mathbf{j} = \frac{d\mathbf{u}}{dt} = \mathbf{A}, \quad \text{où} \quad \mathbf{A} = \mathbf{f} - \text{grad}_T G = \mathbf{f} - v \text{grad } p \quad (24)$$

est, ce que j'appelle l'affinité d'écoulement fluidal parfait. Le terme  $\mathbf{f}$  représente l'intensité du champ de force externe, à l'action duquel le fluide est exposé;  $G$  est le potentiel thermique spécifique et  $v$  est le volume spécifique.

En différenciant, par rapport au temps l'observateur fixe écrira l'équation (3), où  $\mathbf{v}$  est exprimé par (6),

$$\frac{d\mathbf{u}}{dt} = \frac{d\mathbf{u}'}{dt} = \omega_0 [\mathbf{z} \times \mathbf{u}]; \quad (25)$$

et, effectué par l'observateur mobile, la même opération donnera

$$\left( \frac{d\mathbf{u}'}{dt} \right)' = \left( \frac{d\mathbf{u}'}{dt} \right)' + \omega_0 [\mathbf{z} \times \mathbf{u}']. \quad (26)$$

Remarquant que

$$\left( \frac{d\mathbf{u}'}{dt} \right)' = \left( \frac{d\mathbf{u}'}{dt} \right)', \quad (27)$$

on en conclut, que pour l'observateur mobile l'équation dynamique du mouvement relatif du fluide sera

$$\mathbf{j}' = \left( \frac{d\mathbf{u}'}{dt} \right)' = \frac{d\mathbf{u}}{dt} - \omega_0 [\mathbf{z} \times \mathbf{u}] - \omega_0 [\mathbf{z} \times \mathbf{u}]' = \mathbf{A} + \mathbf{g} + \mathbf{f}_c = \mathbf{A}', \quad (28)$$

où

$$\mathbf{g} = -\omega_0 [\mathbf{z} \times \mathbf{v}] = \omega_0^2 \rho \vec{\rho} \quad \text{et} \quad \mathbf{f}_c = -2\omega_0 [\mathbf{z} \times \mathbf{u}']; \quad (28')$$

$\vec{\rho}$  étant un vecteur perpendiculaire à l'axe OZ, dont la longueur est la distance du point considéré du fluide à cet axe. Aux yeux de l'observateur mobile, donc, le fluide est soumis à l'action d'un champ de force externe apparent, dont l'intensité est

$$\mathbf{f}' = \mathbf{f} + \mathbf{g} + \mathbf{f}_c; \quad (29)$$

$\mathbf{g}$  est la force centrifuge, et la force  $\mathbf{f}_c$  est connue sous le nom de force de Coriolis.

Dans le cas où le fluide est mixte, un calcul semblable peut être effectué sur l'équation

$$\mathbf{u}_v = \mathbf{u}_v' + \mathbf{v} \quad (30)$$

Comme équation dynamique du mouvement absolu du  $v$ -ième constituant, écrite, donc, par l'observateur fixe, j'admets (voir ma Théorie [2] des phénomènes de transport), en négligeant, encore une fois, des termes provenant de la viscosité,

$$\mathbf{j}_v = \frac{d\mathbf{u}_v}{dt} = \mathbf{A}_v - \mathbf{R}_v, \quad (31)$$

où

$$\mathbf{A}_v = \mathbf{f}_v - \text{grad}_T G_v = \mathbf{f}_v - v_v \text{grad } p - \text{grad}_T p G_v. \quad (31')$$

$\mathbf{R}_v$  est une résistance indéterminée, satisfaisant à la condition

$$\Sigma x_v \mathbf{R}_v = 0; \quad (32)$$

$G_v$  est le potentiel thermique partiel, et

$$v_v = \frac{\partial G_v}{\partial p}, \quad \text{avec} \quad v_v = \Sigma x_v v_v \quad (33)$$

est le volume spécifique partiel (bien entendu,  $v_v$  n'est pas égal à  $1/c_v$ ).

Comme équation dynamique du mouvement relatif du  $v$ -ième constituant, écrite par l'observateur mobile, on trouve

$$\mathbf{j}_v' = \left( \frac{d\mathbf{u}_v'}{dt} \right)' = \mathbf{A}_v' - \mathbf{R}_v, \quad (34)$$

avec

$$\mathbf{A}_v' = \mathbf{A}_v + \mathbf{g} + \mathbf{f}_{cv}, \quad \text{où} \quad \mathbf{f}_{cv} = -2\omega_0 [\mathbf{z} \times \mathbf{u}_v']. \quad (34')$$



Remarquons, enfin, que des équations (17), (24), (31) et (34) on déduit pour les vitesses barycentriques absolue et relative les équations

$$\frac{d\mathbf{u}}{dt} = \Sigma \frac{d(x_v \mathbf{u}_v)}{dt} = \Sigma x_v \frac{d\mathbf{u}_v}{dt} + \Sigma \frac{dx_v}{dt} \mathbf{u}_v = \mathbf{A} \Sigma x_v \mathbf{u}_v \operatorname{div} \mathbf{u}_d \quad (35a)$$

et

$$\frac{d\mathbf{u}'}{dt} = \mathbf{A} + \mathbf{g} + \mathbf{f}_c - \Sigma x_v \mathbf{u}_v \operatorname{div} \mathbf{u}_d' \quad (35b)$$

5. **La loi de l'énergie.** — L'observateur fixe formule la loi de l'énergie totale pour un fluide simple, en écrivant

$$\frac{\partial (cU)}{\partial t} + \frac{\partial (cK)}{\partial t} = Q - \operatorname{div} (cU\mathbf{u}) - \operatorname{div} (cK\mathbf{u}) - L, \quad (36)$$

ou  $U$  et  $K = K = \frac{1}{2} u^2$  sont respectivement l'énergie interne et l'énergie cinétique macroscopique spécifiques ;

$$L = -c(\mathbf{f} \cdot \mathbf{u}) + \operatorname{div} p\mathbf{u} \quad (37)$$

est le travail externe effectué par le fluide dans son écoulement ; abstraction a été faite, bien entendu, du travail résultant de la viscosité.

Eu égard à (2), l'observateur mobile écrira, comme s'il était fixe,

$$\left( \frac{\partial (cU)}{\partial t} \right)' + \left( \frac{\partial (cK)}{\partial t} \right)' = Q - \operatorname{div} (cU\mathbf{u}') - \operatorname{div} (cK\mathbf{u}') - L. \quad (38)$$

avec la même énergie macrocinétique et le même travail ; ceux-là ont seuls, selon moi, une signification physique.

En vertu de la transformation (13), on peut mettre la loi de l'énergie (36) sous la forme simple

$$c \frac{dU}{dt} + c \frac{dK}{dt} = c \left( \frac{dU}{dt} \right)' + c \left( \frac{dK}{dt} \right)' = Q - L. \quad (39)$$

On peut, évidemment, introduire dans cette dernière équation l'énergie macrocinétique apparente

$K' = \frac{1}{2} u'^2$ , en remarquant que

$$K' = \frac{1}{2} (\mathbf{u} - \mathbf{v})^2 = K - [\mathbf{u} \times \mathbf{v}] + \frac{1}{2} v^2, \quad (40)$$

de sorte que,  $v^2$  étant supposé constant

$$\left( \frac{dK'}{dt} \right)' = \left( \frac{dK}{dt} \right)' - \left( \frac{d}{dt} [\mathbf{u} \times \mathbf{v}] \right)' = \left( \frac{dK}{dt} \right)' - \frac{d}{dt} [\mathbf{u}' \times \mathbf{v}]. \quad (41)$$

Il vient ainsi, comme forme de la loi de l'énergie écrite par l'observateur mobile,

$$c \left( \frac{dU}{dt} \right)' + c \left( \frac{dK'}{dt} \right)' = Q - L \quad (42)$$

ou  $L'$  est un travail fictif, comprenant ceux contre la force centrifuge et contre la force de Coriolis.

La multiplication scalaire de (24) par  $\mathbf{u}$  donne

$$\frac{dK}{dt} = \left( \mathbf{u}, \frac{d\mathbf{u}}{dt} \right) = (\mathbf{f} \cdot \mathbf{u}) - (\mathbf{u}, \operatorname{grad} p). \quad (43)$$

Substituant cette expression de  $dK/dt$  dans (39), on trouve comme loi de l'énergie interne pour un fluide simple, écrite par les deux observateurs,

$$c \frac{dU}{dt} = Q - p \operatorname{div} \mathbf{u} \quad \text{et} \quad c \left( \frac{dU}{dt} \right)' = Q - p \operatorname{div} \mathbf{u}'. \quad (44)$$

En cas où le fluide est mixte, les observateurs formulent la loi de l'énergie totale en écrivant

$$\begin{aligned} \sum c_v \frac{dU_v}{dt} + \sum c_v \frac{dK_v}{dt} &= \sum c_v \left( \frac{dU_v}{dt} \right)' + \sum c_v \left( \frac{dK_v}{dt} \right)' \\ &= \sum \frac{\partial (c_v U_v)}{\partial t} + \sum \frac{\partial (c_v K_v)}{\partial t} + \Sigma \operatorname{div} (c_v U_v \mathbf{u}_v) \\ &\quad + \Sigma \operatorname{div} (c_v K_v \mathbf{u}_v) = Q - L, \end{aligned} \quad (45)$$

où  $K_v = \frac{1}{2} u_v^2$ , et (hypothèse, bien entendu)

$$L = -\Sigma c_v (\mathbf{f}_v \cdot \mathbf{u}_v) + \Sigma \operatorname{div} (c_v j_v \mathbf{u}_v) - \Sigma c_v (\mathbf{Z}_v \cdot \mathbf{u}_v), \quad (46)$$

$Z$  étant, encore une fois, une grandeur indéterminée, satisfaisant à la condition

$$\Sigma c_v \mathbf{Z}_v = 0. \quad (46')$$

Quant à  $j_v$ , c'est une fonction d'état, déterminant l'enthalpie partielle

$$W_v = U_v + j_v, \quad \text{de sorte que} \quad \Sigma c_v j_v = p. \quad (47)$$

On peut donc, écrire

$$L = -\Sigma c_v (\mathbf{f}_v \cdot \mathbf{u}_v) + \operatorname{div} (p\mathbf{u}) + \Sigma \operatorname{div} (c_v j_v \mathbf{u}_v) - \Sigma c_v (\mathbf{Z}_v \cdot \mathbf{u}_v). \quad (48)$$

De (31) on déduit, en multipliant scalairement par  $\mathbf{u}_v$ ,

$$\begin{aligned} \left( \frac{dK_v}{dt} \right)' &= \frac{dK_v}{dt} = \left( \mathbf{u}_v, \frac{d\mathbf{u}_v}{dt} \right) \\ &= (\mathbf{f}_v \cdot \mathbf{u}_v) - (\mathbf{u}_v, \operatorname{grad} G_v) - (\mathbf{R}_v \cdot \mathbf{u}_v) \end{aligned} \quad (49)$$

de sorte que

$$\begin{aligned} \Sigma c_v \left( \frac{dK_v}{dt} \right)' &= \sum c_v \frac{dK_v}{dt} = \Sigma c_v (\mathbf{f}_v \cdot \mathbf{u}_v) \\ &\quad - \Sigma c_v (\mathbf{u}_v, \operatorname{grad} G_v) - \Sigma c_v (\mathbf{R}_v \cdot \mathbf{u}_v). \end{aligned} \quad (50)$$

Il en résulte, par substitution dans (45), comme loi de l'énergie interne, pour les deux observateurs (voir éq. (14)),

$$\begin{aligned} \sum c_v \left( \frac{dU_v}{dt} \right)' &= \sum c_v \frac{dU_v}{dt} = \sum \frac{\partial (c_v U_v)}{\partial t} + \Sigma \operatorname{div} (c_v U_v \mathbf{u}_v) \\ &= \sum \left( \frac{\partial (c_v U_v)}{\partial t} \right)' + \Sigma \operatorname{div} (c_v U_v \mathbf{u}_v') \\ &= Q - \Sigma \operatorname{div} (c_v j_v \mathbf{u}_v) + \Sigma c_v (\mathbf{u}_v, \operatorname{grad} G_v) + \Sigma c_v (\mathbf{x}_v \cdot \mathbf{u}_v) \end{aligned} \quad (51)$$

où

$$\mathbf{x}_v = \mathbf{R}_v + \mathbf{Z}_v, \quad \text{avec} \quad \Sigma c_v \mathbf{x}_v = 0. \quad (51')$$



6. **La loi de l'enthalpie et l'énergie dissipée.** — Par introduction de l'enthalpie partielle (47), l'équation (51) donne la loi de l'enthalpie. Celle-ci est formulée par l'observateur fixe en écrivant

$$\Sigma \frac{\partial (c_v W_v)}{\partial t} = Q + \frac{\partial p}{\partial t} - \Sigma \operatorname{div} (c_v W_v \mathbf{u}_v) + \Sigma c_v (\mathbf{u}_v \cdot \operatorname{grad} T G_v) + \Sigma c_v (\mathbf{X}_v \cdot \mathbf{u}_v). \quad (52)$$

D'autre part, la loi de l'entropie (19) peut s'écrire

$$\Sigma \frac{\partial (c_v T S_v)}{\partial t} = Q - (\mathbf{w} \cdot \mathbf{A}_{th}) + \Sigma c_v S_v \frac{\partial T}{\partial t} - \Sigma \operatorname{div} (c_v T S_v \mathbf{u}_v) + \Sigma c_v S_v (\mathbf{u}_v \cdot \operatorname{grad} T) + \varepsilon. \quad (53)$$

L'élimination de  $Q$  entre ces deux équations et l'introduction du potentiel thermique partiel  $G_v = W_v - T S_v$  donne

$$\Sigma \frac{\partial (c_v G_v)}{\partial t} = \mathbf{w} \cdot \mathbf{A}_{th} + \frac{\partial p}{\partial t} - \Sigma c_v S_v \frac{\partial T}{\partial t} - \Sigma \operatorname{div} (c_v G_v \mathbf{u}_v) + \Sigma c_v (\mathbf{u}_v \cdot \operatorname{grad} G_v) + \Sigma c_v (\mathbf{X}_v \cdot \mathbf{u}_v) - \varepsilon. \quad (54)$$

Mais

$$\frac{\partial (c_v G_v)}{\partial t} = c_v \frac{\partial G_v}{\partial t} + G_v \frac{\partial c_v}{\partial t} = c_v \frac{\partial G_v}{\partial t} - G_v \operatorname{div} (c_v \mathbf{u}_v),$$

avec

$$\frac{\partial G_v}{\partial t} = v_v \frac{\partial p}{\partial t} - S_v \frac{\partial T}{\partial t} + \left( \frac{\partial G_v}{\partial t} \right)_{T_p}. \quad (55)$$

de sorte que

$$\Sigma c_v \frac{\partial G_v}{\partial t} = \Sigma c_v v_v \frac{\partial p}{\partial t} - \Sigma c_v S_v \frac{\partial T}{\partial t},$$

parce que

$$\Sigma c_v \left( \frac{\partial G_v}{\partial t} \right)_{T_p} = 0. \quad (56)$$

D'autre part

$$G_v \operatorname{div} (c_v \mathbf{u}_v) = \operatorname{div} (c_v G_v \mathbf{u}_v) - c_v (\mathbf{u}_v \cdot \operatorname{grad} G_v).$$

L'équation (54) donne donc, en définitive, comme expression de l'énergie dissipée

$$\varepsilon = \Sigma c_v (\mathbf{X}_v \cdot \mathbf{u}_v) = \Sigma c_v (\mathbf{X}_v \cdot \mathbf{u}_v^d), \quad (57)$$

où, bien entendu, l'énergie dissipée par le frottement interne a été négligée. Il ne reste ainsi que l'énergie dissipée par diffusion.

Celle-ci est, comme on voit, indéterminée dans une large mesure. Elle devient déterminée, cependant, si l'on admet, comme je le fais, que l'équation (31) peut s'écrire aussi

$$\frac{d\mathbf{v}_v}{dt} = \mathbf{f} - \operatorname{grad}_T G + \mathbf{Z}_v, \quad (58)$$

ce qui revient à admettre, que

$$\mathbf{X}_v = \mathbf{R}_v + \mathbf{Z}_v = (\mathbf{f}_v - \mathbf{f}) - (\operatorname{grad}_T G_v - \operatorname{grad}_T G). \quad (59)$$

Un calcul semblable peut être effectué par l'observateur mobile. Il aboutit, d'ailleurs, au même résultat.

7. **La centrifugation d'un fluide.** — Je me propose, maintenant, d'appliquer ces considérations à deux exemples concrets.

Je me représente d'abord un fluide simple enfermé dans un tambour cylindrique, lequel est animé d'un mouvement de rotation autour de son axe OZ, supposé fixe, avec une vitesse angulaire constante  $\omega$ . Par suite de son adhésion aux parois du tambour, le fluide est entraîné dans le mouvement de rotation, et finit par tourner comme une seule masse, en vertu de son inertie.

Chaque particule du fluide décrit ainsi, aux yeux d'un observateur fixe, un cercle de rayon  $r$  (sa distance à l'axe OZ), avec une vitesse (tangentielle) (voir l'Introduction)

$$\mathbf{u} = \omega [\mathbf{z} \times \mathbf{r}], \quad (60)$$

sous l'action d'une force centripète

$$\mathbf{f} = -\omega^2 \mathbf{r} \quad (61)$$

par unité de masse. On a, donc, comme équation dynamique du mouvement (macroscopique) de chaque particule.

$$\mathbf{j} = \frac{d\mathbf{u}}{dt} = \mathbf{A} = -\omega^2 \mathbf{r}. \quad (62)$$

Dans le cas le plus simple, où le fluide n'est soumis à l'action d'aucun champ de force externe, — ce qui implique, selon moi, l'uniformité de la température —, la seule cause d'un manque d'uniformité dans l'état du fluide est l'existence d'un gradient de pression radial. Celui-ci est la cause de la force centripète, de sorte que

$$\mathbf{A} = -\omega^2 \mathbf{r} = -\operatorname{grad} p. \quad (63)$$

Aux yeux d'un observateur mobile, entraîné lui-même dans le mouvement de rotation du tambour, le fluide est immobile. Pour lui (voir éq. (28)).

$$\mathbf{j}' = \left( \frac{d\mathbf{u}'}{dt} \right)' = \mathbf{A}' = \mathbf{A} + \mathbf{g} + \mathbf{f}_c = -\operatorname{grad} p + \mathbf{g} + \mathbf{f}_c = 0, \quad (64)$$

où  $\mathbf{g} = \omega^2 \mathbf{r}$  est l'intensité du champ de la force centrifuge (apparent) et  $\mathbf{f}_c = -2\omega[\mathbf{z} \times \mathbf{u}']$  la force de Coriolis. Mais celle-ci est nulle, puisque la vitesse relative  $\mathbf{u}'$  est nulle.

Supposons maintenant que le fluide soit mixte, et soit, par exemple, une solution électrolytique, soumise à l'action d'un champ électrique radial, d'intensité  $\mathbf{h}$  par unité de charge. Le fluide étant supposé d'état uniforme au moment de son introduction dans le tambour, la rotation établira des inhomogénéités uniquement dans le sens radial, notamment des différences de pression et de composition ; alors un état d'équilibre s'étant établi dans le sens radial, on aura comme équation de mouvement du  $v$ -ième constituant écrite par l'observateur fixe,

$$\mathbf{j}_v = \frac{d\mathbf{u}_v}{dt} = -\omega^2 \mathbf{r} = \mathbf{A}_v = \mathbf{f}_v - \operatorname{grad}_T G_v = c_v \mathbf{h} - v_v \operatorname{grad} p - \operatorname{grad}_{T_p} G_v, \quad (65)$$

car ici  $\mathbf{R}_v = 0$ .



Quant à l'observateur mobile, pour lequel il y a équilibre absolu, il écrira la même équation sous la forme

$$0 = j_v' = \left(\frac{du_v'}{dt}\right)' = A_v' = A_v + g. \quad (66)$$

Un mouvement dans le sens radial est rendu possible, en plongeant le tambour dans une grande masse fluide, avec laquelle le fluide enfermé est mis en contact par l'intermédiaire d'une paroi cylindrique supposée poreuse, et mettant, d'ailleurs, le fluide interne en communication avec une autre grande masse fluide encore, par l'intermédiaire d'un tube suivant l'axe OZ. Dans ces conditions, l'affinité  $A_v'$  ne sera plus nulle, et l'équation dynamique du mouvement macroscopique relatif du  $v$ -ième constituant sera

$$j_v' = \left(\frac{du_v'}{dt}\right)' = A_v' - R_v = f_v - \text{grad}_T G_v + g + f_{cv} - R_v, \quad (67)$$

où

$$f_{cv} = -2\omega [z \times u_v']. \quad (67')$$

Il est à remarquer, d'ailleurs, que  $u_v'$  peut être décomposé en une composante tangentielle  $u_{vt}'$  et une composante radiale  $u_{vr}'$ , de sorte que

$$f_{cv} = f_{cvr} + f_{cvt} = -2\omega [z \times u_{vt}'] - 2\omega [z \times u_{vr}']. \quad (67'')$$

Je crois pouvoir admettre que, lorsque l'état est devenu stationnaire, il y a, au moins approximativement, proportionnalité entre la vitesse relative et son affinité conjuguée. J'écris donc :

$$u_v = \alpha A_v' = \alpha (f_v + g - \text{grad}_T G_v + f_{cv}). \quad (68)$$

Cela se décompose en

$$u_{vr}' = \alpha A_{vr}' = \alpha (f_v + g - \text{grad}_T G_v + f_{cvr}) \quad (68 a)$$

et

$$u_{vt}' = \alpha A_{vt}' = \alpha f_{cvt}.$$

Je crois aussi pouvoir admettre comme expression de l'énergie dissipée

$$\varepsilon = \Sigma c_v (A_v' \cdot u_v') = c (A' \cdot u') + \Sigma c_v (A_v' \cdot u_v') = c (A' \cdot u') + \Sigma c_v (X_v \cdot u_v'), \quad (69)$$

où (voir éq. (59))

$$X_v = A_v' - A' \quad (69')$$

Le fluide étant mis en rotation, l'équilibre absolu est impossible et  $A_v$  ne saurait devenir nul. Dans l'état stationnaire l'observateur fixe n'admettra donc certainement pas une proportionnalité, même approchée, entre  $u_v'$  et  $A_v$ . Mais l'hypothèse (68), d'où découle

$$u_v = u_v' + v = \alpha A_v' + v,$$

rend admissible pour lui l'hypothèse

$$u_v = \alpha (A_v + \omega^2 r) = \alpha (f_v + g - \text{grad}_T G_v). \quad (70)$$

Et l'observateur fixe écrira aussi, je pense,

$$\varepsilon = \Sigma c_v ((A_v + \omega^2 r) \cdot u_v) = c ((A + \omega^2 r) \cdot u) + \Sigma c_v (X_v \cdot u_v'). \quad (71)$$

Ce problème de la centrifugation d'un fluide fut traité par divers auteurs ([3], [4]), en admettant directement, comme postulat, que l'observateur mobile formule les lois fondamentales de la thermomécanique des fluides, comme s'il était fixe.

**8. L'écoulement en tube courbe.** — Comme deuxième exemple concret je considère l'écoulement d'un fluide à travers un tube étroit courbé en arc de cercle. Ce problème est, en quelque sorte, l'antithèse du précédent, en ce sens, qu'il n'y aura manque d'uniformité du fluide que dans le sens tangentiel. En effet comme dans le cas du tube droit, traité dans ma Théorie [2], nous négligerons les faibles différences d'état du fluide dans le sens radial. Toute grandeur d'état sera une moyenne pour toute une section droite du tube, et ne sera fonction que du temps et de la coordonnée longitudinale. De même, nous entendrons par vitesse d'écoulement une vitesse moyenne pour toute une section droite du tube, bien qu'ici les différences soient loin d'être négligeables.

Aux yeux d'un observateur fixe, chaque constituant du fluide mixte tourne comme une seule masse avec une vitesse angulaire propre  $\omega_v$  et une vitesse linéaire

$$u_v = \left(\frac{dr}{dt}\right)_v = \omega_v [z \times r], \quad (72)$$

où  $r$  est un vecteur local moyen par rapport à l'axe de rotation fixe OZ. La vitesse angulaire pouvant varier d'une section à l'autre, l'accélération est

$$j_v = \frac{du_v}{dt} = \frac{d\omega_v}{dt} [z \times r] + \omega_v [z \times u_v], \quad (73)$$

où

$$\frac{d\omega_v}{dt} = \frac{\partial \omega_v}{\partial t} + (u_v \cdot \text{grad } \omega_v). \quad (73')$$

L'équation dynamique du mouvement sera, en négligeant toujours la viscosité,

$$\frac{du_v}{dt} = f_v - \text{grad}_T G_v - R_v = A_v - R_v, \quad (74)$$

où  $f_v$ , l'intensité du champ de force externe auquel le fluide est exposé, a une direction quelconque, tandis que le gradient du potentiel thermique est essentiellement dirigé dans le sens tangentiel ; il a, néanmoins, une composante radiale, qui constitue la force centripète  $-\omega_v^2 r$  avec la composante radiale  $f_v r$  de la force  $f_v$ .

Conformément à ce qui a été dit à la fin du paragraphe précédent, l'observateur fixe admettra que, dans l'état stationnaire,

$$u_v = v_{vt} + u_{vr} = \alpha (A_v + \omega_v^2 r) \quad (75)$$



avec

$$\mathbf{u}_{v_r} = \alpha_{v_r} (\mathbf{A}_{v_r} + \omega_v \mathbf{r}) = 0 \quad \text{et} \quad \mathbf{u}_{v_t} = \mathbf{u}_v = \alpha \mathbf{A}_{v_t}. \quad (75')$$

Supposons maintenant que l'observateur soit lui-même animé d'un mouvement de rotation autour de l'axe OZ, avec une vitesse angulaire constante  $\omega_0$ . La vitesse relative sera

$$\mathbf{u}'_v = \mathbf{u}_v - \mathbf{v} = \omega'_v [\mathbf{z} \times \mathbf{r}], \quad \text{avec} \quad \omega'_v = \omega_v - \omega_0, \quad (76)$$

et l'accélération relative

$$\mathbf{j}'_v = \left( \frac{d\mathbf{u}'_v}{dt} \right)' = \left( \frac{d\omega'_v}{dt} \right)' [\mathbf{z} \times \mathbf{r}] + \omega'_v [\mathbf{z} \times \mathbf{u}'_v], \quad (77)$$

où (voir l'Introduction).

$$\left( \frac{d\omega'_v}{dt} \right)' = \frac{d\omega'_v}{dt} = \frac{d\omega_v}{dt}. \quad (77')$$

De la transformation

$$\omega'_v [\mathbf{z} \times \mathbf{u}'_v] = -\omega'^2_v \mathbf{r} = -\omega'^2_v \mathbf{r} + \omega'^2_0 \mathbf{r} - 2\omega_0 [\mathbf{z} \times \mathbf{u}'_v], \quad (78)$$

il résulte que

$$\left( \frac{d\mathbf{u}'_v}{dt} \right)' = \mathbf{A}'_v - \mathbf{R}_v = \mathbf{A}_v + \mathbf{g} - \mathbf{f}_{cv} - \mathbf{R}_v, \quad (79)$$

où

$$\mathbf{g} = \omega'^2_0 \mathbf{r} \quad \text{et} \quad \mathbf{f}_{cv} = -2\omega_0 [\mathbf{z} \times \mathbf{u}'_v]. \quad (79')$$

Il est intéressant de remarquer, que

$$\mathbf{A}'_v + \omega'^2_v \mathbf{r} = \mathbf{A}_v + \omega'^2_0 \mathbf{r}, \quad (80)$$

de sorte que l'observateur mobile écrira, au lieu de (75),

$$\mathbf{u}'_v = \alpha (\mathbf{A}'_v + \omega'^2_v \mathbf{r}). \quad (81)$$

### Appendice

Une question qui me paraît intéressante, est celle de savoir si l'observateur mobile doit traiter la température et la pression comme des grandeurs spécifiques, rapportées à l'unité de masse,

ou comme des grandeurs concentrées, rapportées à l'unité de volume. La réponse à cette question est la suivante : la température se comporte comme une grandeur spécifique et la pression comme une grandeur concentrée. En voici la preuve.

De la relation

$$G = W - TS, \quad (82)$$

il résulte que

$$\frac{\partial G}{\partial t} = \frac{\partial W}{\partial t} - T \frac{\partial S}{\partial t} - S \frac{\partial T}{\partial t} \quad (83 a)$$

et

$$\left( \frac{\partial G}{\partial t} \right)' = \left( \frac{\partial W}{\partial t} \right)' = T \left( \frac{\partial S}{\partial t} \right)' - S \left( \frac{\partial T}{\partial t} \right)'. \quad (83 b)$$

$G$ ,  $W$  et  $S$  étant des grandeurs spécifiques, la différence de ces deux équations apprend, eu égard à (1), que

$$(v. \text{grad } G) = (v. \text{grad } W) - T (v. \text{grad } S) - S \left\{ \left( \frac{\partial T}{\partial t} \right)' - \frac{\partial T}{\partial t} \right\}$$

de sorte que

$$\left( \frac{\partial T}{\partial t} \right)' = \frac{\partial T}{\partial t} + (v. \text{grad } T). \quad (84)$$

D'autre part, de la relation

$$W = U + pv, \quad \text{ou} \quad cW = cU + p, \quad (85)$$

il résulte que

$$\frac{\partial (cW)}{\partial t} = \frac{\partial (cU)}{\partial t} + \frac{\partial p}{\partial t} \quad (86 a)$$

et

$$\left( \frac{\partial (cW)}{\partial t} \right)' = \left( \frac{\partial (cU)}{\partial t} \right)' + \left( \frac{\partial p}{\partial t} \right)', \quad (86 b)$$

de sorte que, en vertu de (2).

$$\left( \frac{\partial p}{\partial t} \right)' = \frac{\partial p}{\partial t} + \text{div } (cWv) - \text{div } (cUv) = \frac{\partial p}{\partial t} + \text{div } (pv). \quad (87)$$

Manuscrit reçu le 12 octobre 1955.

### BIBLIOGRAPHIE

- [1] VERSCHAFFELT (J. E.), *Bull. Acad. roy. de Belg.*, 1955, **41**, 709-717.  
 [2] VERSCHAFFELT (J. E.), *Physica*, 1952, **18**, 43-62.  
 [3] DE GROOT (S. R.), MAZUR (P.) et OVERBEEK (J. Th. G.), *J. chem. physics*, 1952, 1825-1829.  
 [4] HOOGMAN (G. J.), HOLTMAN (H.), MAZUR (P.) et DE GROOT (S. R.), *Physica*, 1953, **19**, 1095-1108.



# RÉTRODIFFUSION (BACKSCATTERING) DES ÉLECTRONS PAR LES SOLUTIONS ET LES ALLIAGES

Par LOUIS DANGUY et ROBERT QUIVY,

Institut Interuniversitaire des Sciences Nucléaires,  
Centre annexé à la Faculté Polytechnique de Mons.

**Sommaire.** — Après avoir rappelé en quoi consiste le phénomène de backscattering et les facteurs dont il dépend, les auteurs exposent les résultats de leurs travaux expérimentaux dans le cas des solutions et des alliages, avec des sources de Thallium 204 et de Césium 137.

Ils montrent que le nombre de particules diffusées vers l'arrière est fonction d'un nombre atomique fictif calculable par une formule simple.

En plus, dans le cas des solutions, le carré du nombre de particules diffusées est une fonction linéaire du produit de ce nombre atomique fictif par le poids spécifique de la solution envisagée.

**I. Introduction.** — Le rayonnement d'une source  $\beta$  est diffusé par un écran, notamment sous des angles voisins de  $180^\circ$  [1].

Ce phénomène est connu sous le nom de backscattering (rétrodiffusion) et a reçu des applications pratiques telles que la mesure de faibles épaisseurs de dépôts métalliques ou des couches de peinture.

L'intensité du rayonnement diffusé vers l'arrière dépend des facteurs suivants (fig. 1 et 2) :

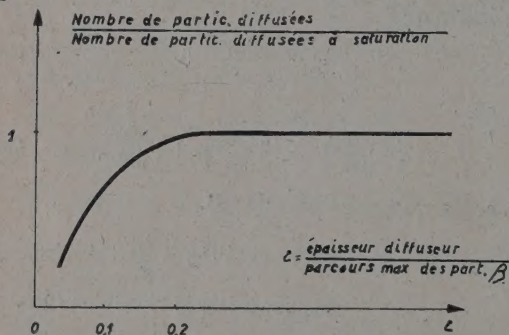


FIG. 1.

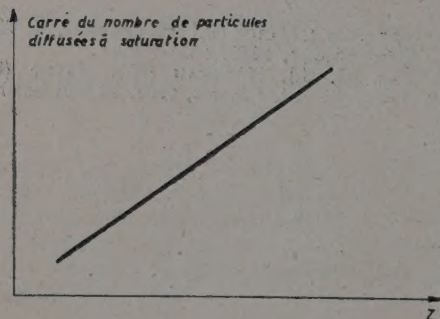


FIG. 2.

1° de l'énergie maximum du rayonnement  $\beta$  incident ;

2° de l'épaisseur de l'écran : cette intensité croît jusqu'à une valeur de saturation correspondant, toutes autres choses égales, à  $\frac{2}{10}$  environ du parcours maximum des particules  $\beta$  dans l'élément diffusant (Range) ;

3° du nombre atomique  $Z$  de celui-ci : le carré du nombre de particules diffusées vers l'arrière est en toute première approximation proportionnel à  $Z$ .

Récemment, Müller [2] a signalé que lorsque le diffuseur est un composé chimique et non un élément, les résultats ci-dessus sont encore valables, à la condition d'associer à ce composé un nombre atomique fictif qui se calcule par une formule simple.

Celle-ci s'écrit, pour le composé  $A_m B_n$  :

$$\bar{Z}_{A_m B_n} = \frac{mAZ_A + nBZ_B}{mA + nB}$$

où  $A$  et  $B$  désignent les masses atomiques des constituants et  $Z_A$  et  $Z_B$  leurs nombres atomiques.

Elle exprime que le nombre atomique fictif d'un composé chimique est la somme des produits des pourcentages en poids des atomes constituants par leurs nombres atomiques.

D'autres formules de nombres atomiques fictifs ont été signalées dans la littérature à l'occasion de l'étude de différents phénomènes [3].

Celle que J. Saldick et A. O. Allen [3] ont appliquée et qui s'écrit pour le composé  $A_m B_n$  :

$$\bar{Z}_{A_m B_n} = \frac{mZ_A^2 + nZ_B^2}{mZ_A + nZ_B}$$

est la plus proche de la formule de Müller puisque, en toute première approximation, on peut considérer que le rapport  $\frac{Z}{A}$  est constant pour tous les éléments (l'hydrogène excepté, pour lequel  $\frac{Z}{A} = 1$ ) (fig. 3).



Mais ainsi qu'on le verra par la suite, la formule de Müller donne de meilleurs résultats dans le cas présent.

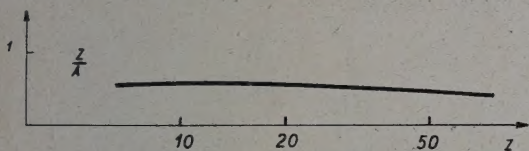


FIG. 3.

**II. Cas des solutions et des alliages.** — a) APPAREILLAGE. — Afin d'examiner la rétrodiffusion due aux solutions et aux alliages, nous avons réalisé le dispositif expérimental schématisé à la figure 4.

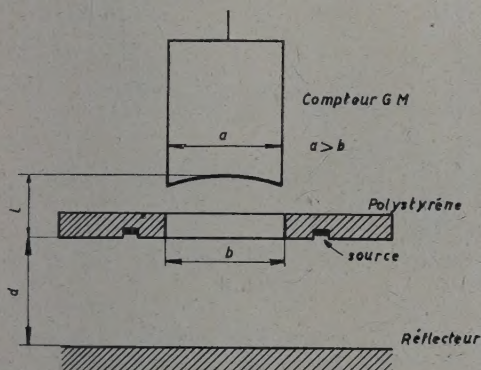


FIG. 4.

La source est une mince couche de produit radioactif, de quelques microcuries, déposée et évaporée dans une rainure annulaire pratiquée dans une plaquette en polystyrène.

L'épaisseur de cette plaquette est supérieure au parcours maximum des particules  $\beta$  de la source de telle sorte que le rayonnement direct ne puisse influencer le compteur de Geiger.

Les différentes solutions étudiées sont contenues dans un baquet en polystyrène (ou en verre) qui s'adapte au support de source. Les plaquettes métalliques essayées sont disposées dans les mêmes conditions. Elles ont été soigneusement polies.

On sait que, pour un tel dispositif, il existe des conditions géométriques optima.

Nous caractérisons la perfection de la disposition de cet appareillage par un « coefficient d'efficacité  $\eta$  ». Ce coefficient est, par définition, le quotient par le taux de comptage sans diffuseur, de la différence des taux de comptage avec et sans diffuseur :

$$\eta = \frac{N_{\text{avec diffuseur}} - N_{\text{sans diffuseur}}}{N_{\text{sans diffuseur}}}$$

( $N$  : nombre de coups comptés par minute).

Il est évident que le taux de comptage sans diffuseur tient compte de la diffusion en arrière due à l'air, mais il est nécessaire de faire intervenir un élément de référence qui soit fonction des caractéristiques de la source, notamment de son activité. D'autre part, ce coefficient est non dimensionnel.

Dès que le type de compteur et la source ont été choisis, les seules caractéristiques variables du montage sont (fig. 4) :

1° la distance source-compteur :  $l$ ,

2° la distance source-diffuseur :  $d$ ,

Nous avons étudié séparément l'influence de ces deux facteurs sur le coefficient  $\eta$ .

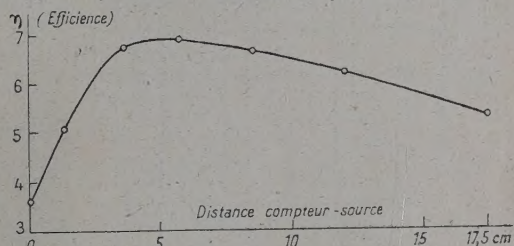


FIG. 5. — Réflecteur : Pb. Distance compteur-réflecteur constante.

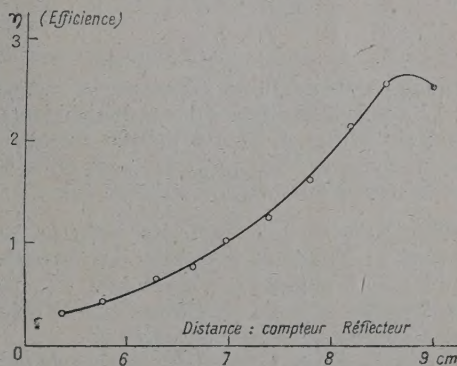


FIG. 6. — Réflecteur : eau distillée. Distance compteur-source constante.

Les figures 5 et 6 en donnent les résultats graphiques. Elles montrent qu'il existe une valeur optimum de  $l$ . (Les deux essais ont été réalisés avec des diffuseurs différents et des distances source-réflecteur constantes pour chaque essai, mais différentes d'un essai à l'autre.) Il en est de même pour  $d$ .

Yaffe et Justus [4] ont étudié la répartition de l'intensité du rayonnement diffusé (en fonction de la position angulaire du compteur de Geiger) et ont trouvé un maximum pour un angle de  $180^\circ$  entre flux incident et l'axe du compteur. Ces travaux nous permettent d'avancer une interprétation physique de la loi de variation de  $\eta$  avec  $l$  et  $d$  :



lorsqu'une des distances  $l$  ou  $d$  croît à partir d'une valeur faible, l'angle solide de comptage, défini par le type de compteur diminue, ce qui tendrait à faire tomber la valeur  $\eta$ , mais la partie effectivement active du compteur à fenêtre se trouve de plus en plus dans une zone de diffusion telle que les rayons diffusés font avec les rayons incidents des angles de l'ordre de  $180^\circ$ , tout au moins en ce qui

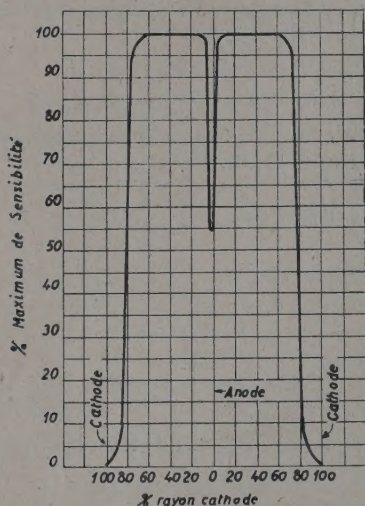


FIG. 7.

concerne la partie du flux intéressant le compteur (fig. 7). L'importance relative de ces deux influences est fonction de  $l$  et  $d$ , ce qui justifie l'allure des courbes d'efficacité. Nos résultats sont en accord avec ceux signalés dans la littérature [4].

b) RÉSULTATS. — Les résultats obtenus avec une source de Thallium 204 pour des épaisseurs de liquides ou d'alliages correspondant à la saturation, dans les mêmes conditions géométriques, sont portés en graphique à la figure 8.

En ordonnée figure le carré du nombre de particules diffusées ( $N^2$ ) par unité de temps et en abscisse le nombre atomique  $\bar{Z}$  des corps envisagés.

Le nombre atomique des solutions et des alliages est à calculer par une formule analogue à celle de Müller.

Par exemple, pour une solution aqueuse contenant  $p$  % en poids de corps  $P$ , on a

$$\bar{Z}_{\text{sol.}} = \frac{p \bar{Z}_P + (100 - p) \bar{Z}_{\text{H}_2\text{O}}}{100} \quad (1)$$

où  $\bar{Z}_P$  et  $\bar{Z}_{\text{H}_2\text{O}}$  sont donnés par la formule de Müller.

Le nombre atomique fictif d'un alliage contenant  $p$  % en poids de métal  $M$  et  $(100 - p)$  % de métal  $N$  est :

$$\bar{Z}_{\text{all.}} = \frac{p \bar{Z}_M + (100 - p) \bar{Z}_N}{100} \quad (2)$$

Ainsi que le montre la figure 8, tous les points correspondant aux éléments, aux composés chimiques, aux solutions et aux alliages se placent sur la même courbe.

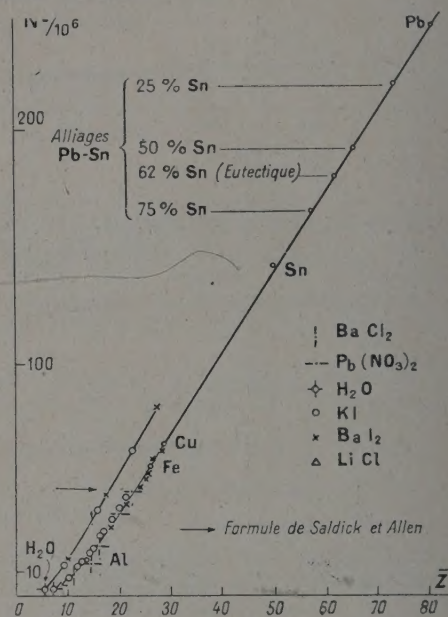


FIG. 8.

Nous avons essayé des solutions aqueuses de  $\text{K I}$ ,  $\text{Pb}(\text{NO}_3)_2$ ,  $\text{Ba I}_2$ ,  $\text{Zn SO}_4$ ,  $\text{Li Cl}$  (solutions binaires ou ternaires), des solutions de produits organiques (acétone-bromoforme) et des alliages de  $\text{Pb}$  et de  $\text{Sn}$  (25, 50, 62, 75 % de  $\text{Sn}$ ).

Une source de Césium 137 a donné des résultats analogues à ceux que nous avons obtenus avec le Thallium 204.

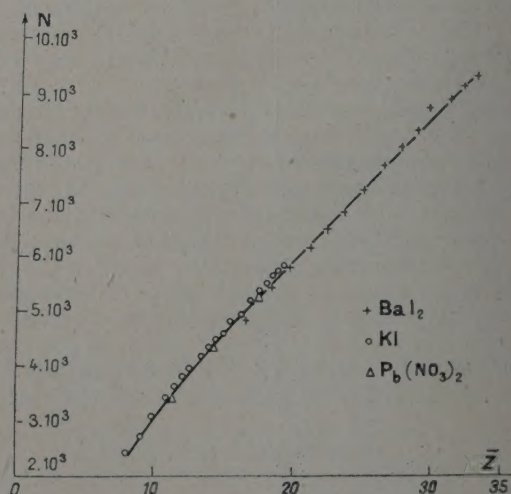


FIG. 9.



Les tableaux ci-après donnent les valeurs des  $Z$  fictifs de différents composés et solutions.

COMPOSÉ	$\bar{Z}$
Acétone	6,03
Ag NO <sub>3</sub>	32,74
Alcool éthylique	6,04
Ba Cl <sub>2</sub>	42,72
Ba I <sub>2</sub>	54,05
Bromoforme	33,49
Glycérine	6,60
H <sub>2</sub> O	7,22
H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	10,47
K I	44,99
Li Cl	14,71
Na Cl	14,64
Na NO <sub>3</sub>	8,65
NH <sub>4</sub> Cl	13,18
NH <sub>4</sub> NO <sub>3</sub>	7,76
Pb (NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	51,12
Zn SO <sub>4</sub>	18,50

#### Z DES SOLUTIONS AQUEUSES DE

CORPS DISSOUS % EN POIDS	Ba Cl <sub>2</sub>	Ba I <sub>2</sub>	KI	Li Cl	Pb (NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	Zn SO <sub>4</sub>
10	10,77	11,90	10,99	7,97	11,61	7,85
20	14,32	16,59	14,77	8,72	15,00	8,48
30	—	21,27	18,55	9,47	20,39	9,12
40	—	25,95	22,33	—	—	9,75
50	—	30,64	26,11	—	—	10,39
60	—	35,32	—	—	—	11,02

On a en effet :

$$\bar{Z}_{\text{sol}} - \bar{Z}_{\text{H}_2\text{O}} = \frac{p}{100} (\bar{Z}_P - \bar{Z}_{\text{H}_2\text{O}})$$

par la formule (1). D'autre part, de la figure 9 on déduit :

$$N - N_{\text{H}_2\text{O}} \simeq K_1 N_{\text{H}_2\text{O}} (\bar{Z}_{\text{sol}} - \bar{Z}_{\text{H}_2\text{O}}).$$

c) PRÉCISION. — Pour chaque essai, plusieurs séries de cinq mesures de 30 000 coups ont été effectuées.

d) CONCLUSIONS. — Les résultats que nous venons d'indiquer montrent que le nombre de particules diffusées à saturation dépend du nombre atomique donné par la formule :

$$\bar{Z} = \varepsilon p_1 Z_1 (\varepsilon p_1 = 1)$$

où les  $p_1$  représentent les concentrations en poids des constituants du corps diffuseur et  $Z_1$  les nombres atomiques de ceux-ci quel que soit le diffuseur envisagé : élément, composé chimique, solution, alliage.

Il est donc possible d'explorer à l'aide de solutions ou d'alliages, d'une façon beaucoup plus générale, les courbes relatives au phénomène de rétrodiffusion notamment dans les zones de  $Z$  où il est difficile de trouver des éléments sous forme utilisable expérimentalement.

La forme de la courbe de la figure 8 dépend des conditions expérimentales.

Sur la figure 8 sont également figurés quelques points déterminés par la formule de J. Saldick et A. O. Allen. Ils sont nettement sur une autre courbe que la courbe générale.

Nos résultats sont en accord avec la formule donnée par Zumwalt [5], formule qui s'écrit pour des solutions aqueuses, par exemple :

$$N - N_{\text{H}_2\text{O}} = K N_{\text{H}_2\text{O}} (\bar{Z}_P - \bar{Z}_{\text{H}_2\text{O}})^j \left(\frac{p}{100}\right)^k \quad (3)$$

où :  $\bar{Z}_P$  représente le nombre atomique fictif du corps dissous,

$K$  un coefficient dépendant de l'appareillage,  $j$  et  $k$  des exposants dont les valeurs sont très voisines de 1,

$p$  la concentration en poids du corps dissous.

III. Particularités des solutions. — A l'aide des résultats obtenus pour les solutions, nous avons tracé les graphiques des figures 10 et 11.

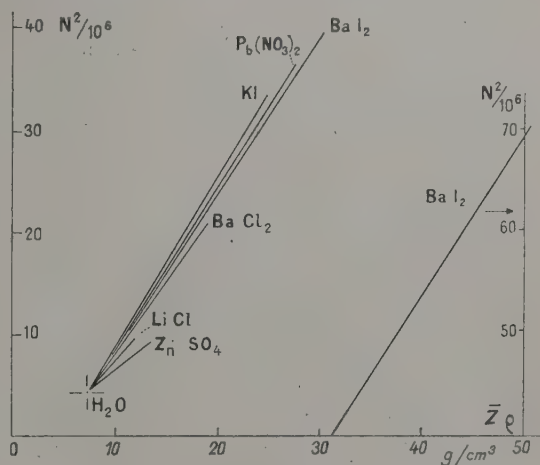


FIG. 10.

En ordonnée figure le carré du nombre de particules diffusées par minute vers l'arrière et en abscisse le produit  $\bar{Z}_P$  du nombre atomique fictif de la solution par le poids spécifique de celle-ci.

On remarque que les fonctions représentées sont linéaires mais différentes d'une solution à l'autre.



Les essais ont été répétés dans différentes conditions et avec différents supports de sources: polystyrène, papier, mica, ... Dans tous les cas, nous avons retrouvé la linéarité signalée.

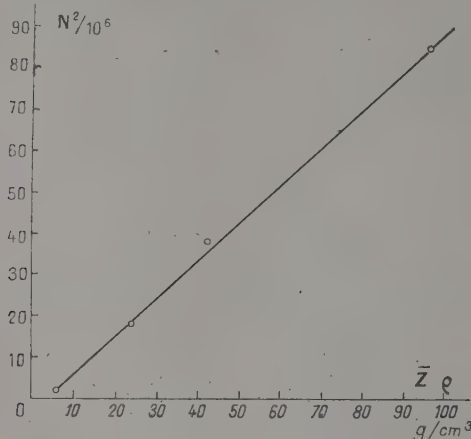


FIG. 11. — Solutions organiques acétone-bromoforme.

INTERPRÉTATION DU PRODUIT  $\bar{Z}\rho$  : Afin d'interpréter le produit  $\bar{Z}\rho$ , considérons une solution des composés  $A_mB_n$  et  $C_kD_l$ .

Désignons par  $p$  et  $(1 - p)$  leurs concentrations en poids. On a :

$$\bar{Z}\rho = \left[ p \frac{mAZ_A + nBZ_B}{mA + nB} + (1 - p) \frac{kCZ_C + lDZ_D}{kC + lD} \right] \rho$$

qui s'écrit encore :

$$\bar{Z}\rho = N_A Z_A A + N_B Z_B B + N_C Z_C C + N_D Z_D D,$$

si  $N_A$ ,  $N_B$ ,  $N_C$  et  $N_D$  désignent les nombres d'atomes des constituants A, B, C et D par unité de volume de solution, puisque

$$N_A = \frac{p \cdot \rho \cdot m}{mA + nB}.$$

On en déduit que d'une façon générale :

$$\bar{Z}\rho = \epsilon N_A Z_A A \text{ (par unité de volume).}$$

IV. Influence de la température. — La figure 12 montre les résultats que nous avons obtenus en

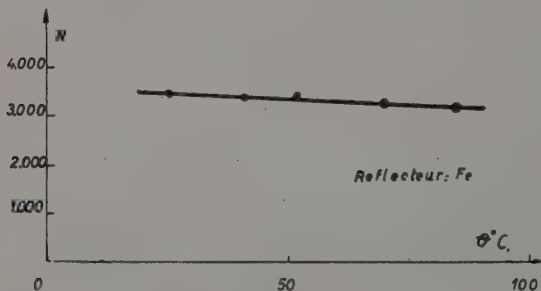


FIG. 12.

faisant varier la température de l'étuve dans laquelle nous avons placé le dispositif.

Il semble que le nombre de particules diffusées à saturation diminue très faiblement lorsque la température augmente, mais il est difficile de donner de plus amples détails, la précision étant insuffisante.

Le phénomène peut s'expliquer comme suit : sous l'effet de la chaleur le diffuseur se dilate. Le parcours maximum des particules  $\beta$  augmente et celles-ci pénètrent plus profondément dans le diffuseur. Pour les couches profondes, l'angle solide sous-tendu par le compteur diminue et par suite le nombre de particules comptées également.

V. Application : Détermination de la composition quantitative d'une solution binaire. — Pour déterminer quantitativement la composition d'une solution binaire, dont on connaît les constituants, il suffit de compter le nombre de particules qu'elle diffuse vers l'arrière et par le graphique de la figure 8 d'en déduire  $\bar{Z}$ .

La formule (1) permet ensuite de calculer la concentration de la solution en corps dissous.

Le résultat peut s'obtenir rapidement par une méthode graphique.

En effet, d'après la formule (1),  $\bar{Z}_{sol}$  est une fonction linéaire de la concentration  $p$ , dont la représentation graphique est immédiate (fig. 13). On en déduit la méthode indiquée à la figure 14.

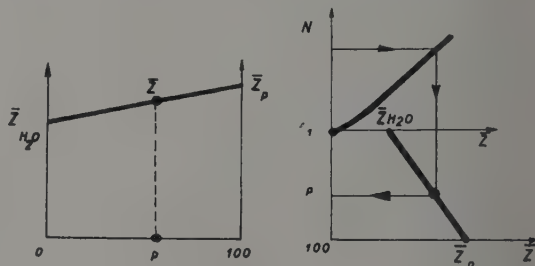


FIG. 13 et 14.

Cependant, si l'on ne dispose pas de la courbe de la figure 8, il est plus simple d'exploiter la propriété de linéarité en fonction de  $\bar{Z}\rho$ , que nous avons signalée. La droite correspondant à la solution examinée peut se tracer à partir de deux points relatifs à des solutions de concentrations connues.

Du nombre de coups diffusés on déduit  $\bar{Z}\rho$ . Par pesée, on obtient  $\rho$ . On calcule ensuite  $\bar{Z}_{sol}$ , d'où l'on tire la valeur du pourcentage en poids des constituants dont les  $\bar{Z}$  sont connus.

EXEMPLES : 1° Une solution de nitrate de plomb étudiée a donné :

$$N = 4.361 \text{ coups/min.}$$

$$\rho = 1,16 \text{ g/cm}^3$$



d'où :

$$\bar{Z}_{\text{sol.}, \rho} = 16,89 \text{ g/cm}^3 \text{ (figure 10)}$$

$$\bar{Z}_{\text{sol.}} = 14,53$$

et

$$p = \text{pourcentage en poids de Pb (NO}_3)_2 =$$

$$\frac{\bar{Z}_{\text{sol.}} - \bar{Z}_{\text{H}_2\text{O}}}{\bar{Z}_{\text{Pb(NO}_3)_2} - \bar{Z}_{\text{H}_2\text{O}}} = 16,65 \%$$

car

$$\bar{Z}_{\text{H}_2\text{O}} = 7,22 \text{ et } \bar{Z}_{\text{Pb(NO}_3)_2} = 51,12.$$

2° Calcul du nombre de molécules d'eau de cristallisation de l'iodure de baryum.

Nous avons dissous : 80,01 g d'iodure de baryum cristallisé dans 85,00 g d'eau ; soit en pourcentage en poids : 48,49 %. Les résultats obtenus sont :

$$N = 7.990 \text{ coups/minute}$$

$$\bar{Z}_{\text{sol.}, \rho} = 46,61 \text{ g/cm}^3$$

$$\rho = 1,66 \text{ g/cm}^3$$

$$\bar{Z}_{\text{sol.}} = \frac{46,61}{1,66} = 28,01$$

$$p = \frac{\bar{Z}_{\text{sol.}} - \bar{Z}_{\text{H}_2\text{O}}}{\bar{Z}_{\text{BaI}_2} - \bar{Z}_{\text{H}_2\text{O}}} \cdot 100 = 44,40 \%$$

Par comparaison avec la quantité dissoute, on trouve que les 80,01 g d'iodure de baryum contiennent 6,75 g d'eau.

On en déduit le nombre de molécules d'eau de cristallisation de l'iodure de baryum :

$$\frac{6,75}{10,02} : \frac{80,01 - 6,75}{391,20} = 2,00.$$

Nous terminerons cette note en remerciant MM. les Prs R. J. Bradfer, J. Franeau, et P. Winkler de la Faculté Polytechnique de Mons pour les judicieux conseils qu'ils nous ont donnés.

Manuscrit reçu le 13 septembre 1955.

## BIBLIOGRAPHIE

- [1] [4] WHITEHOUSE et PUTMAN, *Radioactive Isotopes*, Oxford 53.
- [2] MULLER, Interaction of beta particles with matter. *Phys. Rev.*, 1954, **93**, 891.
- [3] HINE (G. J.), Secondary electrons emission and effective atomic number. *Nucleonics*, 1952, **10**, n° 1, 9-15.
- SALDICK (J.) et ALLEN (A. O.), Backscattering from targets of low atomic numbers bombarded with 1-2 keV electrons, *J. Chem. Phys.*, 1954, **22**, 438.
- [4] YAFFE et JUSTUS, *J. Chem. Soc.* (1949, part. V, p. S 341-351).
- [5] ZUMWALT (L. R.), The best performance from beta gages. *Nucleonics*, 1954, n° 1, 55-58.

## REVUE DES LIVRES

GRIVET (P.) (rédigé sous la direction de) (par GABILLARD R., AYANT Y., SOUTIF M., EXTERMANN J. C., BUYLE-BODIN M., BENE J. G. et DENIS P. M.). **La résonance paramagnétique nucléaire.** Moments dipolaires et quadrupolaires. (1 vol., 16 × 24 cm, 298 pages, C. N. R. S., Paris, 1955, 1 800 F.)

Si de nombreuses mises au point et thèses ont été publiées sur la résonance magnétique nucléaire et sur la résonance quadrupolaire, il manquait une étude complète, un livre qui soit un outil de travail.

Le livre publié sous la direction du professeur Grivet comble cette lacune. Notons qu'il est avant tout l'œuvre d'une équipe, l'équipe de résonance nucléaire de l'École Normale Supérieure à laquelle s'est joint le groupe de Genève ; c'est dire que chaque question particulière a été traitée par un spécialiste.

Après une introduction qui pose et fait comprendre le problème de la résonance nucléaire, la théorie macroscopique du phénomène est développée à l'aide du modèle gyroscopique de Bloch ; les théories du balayage et les phénomènes transitoires sont analysés en détail. A cette théorie « classique » succède la théorie quantique (chapitre III) en particulier l'étude de la relaxation et des

largeurs de raie dans les liquides et les solides (fonction de corrélation et méthode des moments).

Les chapitres IV, V et VI sont consacrés aux méthodes d'observation (y compris les méthodes des échos de spin de Hahn et de mémoire de phase de Gabillard) et aux appareillages ; ceux-ci sont décrits avec soin ; les détails pratiques abondent ainsi que les schémas complets et utilisables.

Un tableau détaillé des moments nucléaires termine l'exposé de la résonance magnétique nucléaire (chapitre VII).

L'intérêt de l'ouvrage est renforcé par les deux derniers chapitres consacrés l'un à la résonance électrique quadrupolaire, au double point de vue théorique et expérimental, l'autre aux théories sur la répartition des moments magnétiques nucléaires dans le tableau périodique des éléments.

Comme le dit le professeur Gorter dans son introduction, « Il me semble incontestable que ce livre contient une grande partie des connaissances indispensables à acquérir par tout chercheur qui veut se consacrer à l'étude de ce domaine nouveau et l'on peut savoir gré aux auteurs qui ont rassemblé ces matériaux et ont présenté ces connaissances d'une manière claire et consciencieuse. »

J. UEBERSFELD.



## STRUCTURE DES SOLIDES ET ABSORPTION DIPOLAIRE HERTZIENNE DES COMPOSÉS ORGANIQUES : CAMPHRE ET DÉRIVÉS

Par M<sup>me</sup> MARIE FREYMANN,

Faculté des Sciences de Rennes.

**Sommaire.** — Essayant d'étendre aux composés organiques les idées invoquées pour les corps minéraux, nous étudions ici les propriétés diélectriques du camphre naturel ou synthétique d'une part, de la fenchone d'autre part, puis des mélanges fenchone + camphre naturel.

En ondes centimétriques, la bande Debye découverte par Powles est sensiblement la même pour les camphres synthétique ou naturels ( $U = 0,15$  eV).

Par contre en ondes kilométriques, la bande signalée par Yager-Morgan pour le camphre synthétique ( $U = 0,98$  eV) est due, en réalité, à la présence de fenchone ; il en est de même pour les très faibles bandes signalées ici pour le camphre naturel du Japon (0,48 eV) ou de Chine (0,31 eV).

Pour les mélanges camphre-fenchone, l'intensité de la bande Debye décroît rapidement quand on passe de la fenchone pure aux mélanges 20 % ; 9 % puis 6 % ; en outre, l'énergie d'activation  $U$  passe de 1,35 à 1,20, 0,50 puis 0,22 eV. Enfin, pour ces mélanges, on note également ce fait important : la température du changement de phase varie avec la teneur en fenchone dans le camphre.

Les travaux effectués par divers chercheurs au Laboratoire de Physique de la Faculté des Sciences de Rennes, ont eu pour but de souligner l'influence des défauts de réseau dans les solides sur l'absorption dipolaire Debye dans le spectre hertzien [2]. Il s'agissait uniquement, jusqu'ici, de composés minéraux du type ionique (NaCl) ou semi-conducteur (ZnO) ; dans ce cas, l'interprétation par défauts de réseau est parfaitement établie maintenant.

Certes, de nombreux travaux ont été effectués sur les composés organiques (Girard et Abadie, Bauer, Magat et coll. en France, Smyth et coll. aux U. S. A....) mais leur interprétation conservait encore l'aspect primitif de la théorie de Debye : l'absorption dipolaire résulterait de la rotation de dipôles constitués par la molécule ou une partie de la molécule. Et (à l'exception d'un travail de Sack [6]), on n'avait invoqué ni l'existence de lacunes dans le réseau cristallin, ni le rôle que pouvaient jouer des transferts d'électrons.

C'est en vue d'essayer d'établir un lien entre l'interprétation des phénomènes diélectriques observés pour les composés minéraux et ceux obtenus pour les composés moléculaires que nous avons abordé ces recherches expérimentales sur le camphre et ses dérivés : Le présent travail ne constitue, bien entendu, qu'une première étape dans cette voie.

**I. — Les deux phénomènes diélectriques : Absorption Debye dipolaire et changements de phase. — Travaux antérieurs.** — Comme l'ont montré les travaux de l'école de Smyth, comme nous l'avons souligné à propos de sels d'ammonium [1], il convient de bien distinguer deux phénomènes diélectriques essentiellement distincts : L'absorption dipolaire Debye. — Les anomalies de la constante diélectrique  $\epsilon'$  et de l'absorption  $\epsilon''$

lors des changements de phase. Notre choix du camphre et de ses dérivés tient à ce que ces composés organiques fournissent un excellent exemple de la superposition de ces deux effets.

Le premier travail sur les propriétés diélectriques, en ondes kilométriques, des dérivés du camphre est dû à Yager et Morgan [7] : ils ont indiqué que le camphre naturel dextrogyre montre une variation brusque de  $\epsilon'$  lors du changement de phase à 241° K mais aucune absorption Debye de 173 à 293° K. Par contre, un camphre synthétique (que ces auteurs croyaient pur) montre, outre un changement de phase vers 208° K, une absorption dipolaire intense, au-dessous du point de transition. Yager et Morgan ont examiné également le bornéol, l'isobornéol, l'anhydride camphorique, le chlorure de bornyle.

En 1953, Powles [5] reprit ces recherches en ondes centimétriques, décelant un autre domaine d'absorption Debye, au-dessus de la transition de 241° K. Citons, enfin, pour mémoire une note de Goltzman et Raskin [4].

**II. — Absorption et changements de phase des camphres naturels et synthétique.** — Nous avons repris ces expériences en 1951, d'une part en ondes kilométriques (0,1, 1, 10, 100, 1 000 kHz), d'autre part, en ondes centimétriques (9 560 MHz) pour le camphre synthétique et pour deux camphres naturels dextrogyres (l'un du Japon, l'autre de Chine) (1).

Le produit était examiné sous forme de poudre tassée dans le condensateur (sauf pour les mélanges fenchone-camphre versés à l'état fondu). La figure 1 rassemble quelques-uns de nos résultats

(1) Ce travail a été repris et confirmé récemment par P. Gendrel [3].



en ondes kilométriques (à gauche) et centimétriques (à droite). La figure 2 résume nos mesures et celles de Powles par la représentation  $\log v_c - 1/T$ .

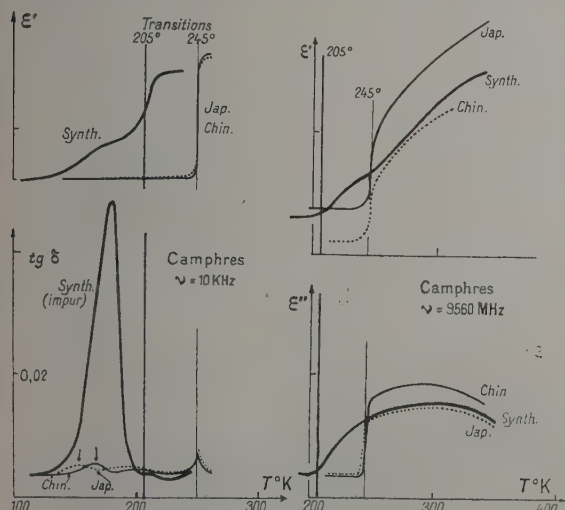


FIG. 1.

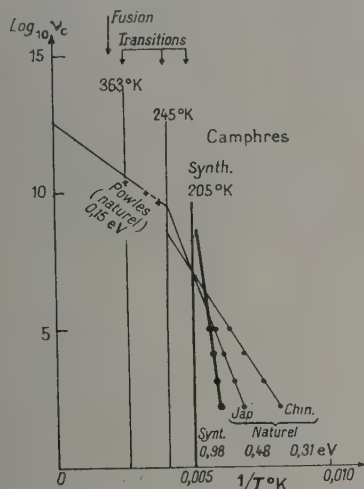


FIG. 2.

1) EN ONDES KILOMÉTRIQUES, pour les camphres naturels du Japon et de Chine, nous observons, au réchauffement, un changement de phase à 245° K (Yager et Morgan : 242° K au réchauffement, 236° K au refroidissement) ; pour le camphre synthétique, il a lieu vers 205° K approximativement (la variation de  $\varepsilon'$  est moins brutale que précédemment).

En ce qui concerne l'absorption dipolaire Debye, comme Yager et Morgan, nous observons une absorption assez intense pour le camphre synthétique ; par contre, pour le camphre naturel (pour

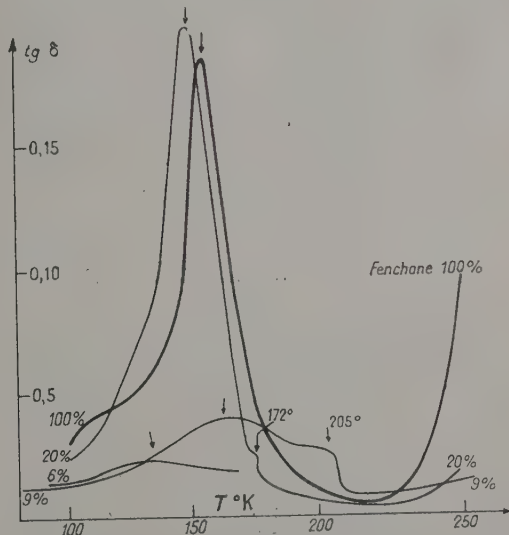
lequel les auteurs américains n'avaient pas décelé de bande), nous avons pu mettre en évidence une faible bande, de position d'ailleurs différente ; pour le camphre du Japon et celui de Chine.

La figure 2 montre que les énergies d'activation (pour les bandes situées au-dessous du point de transition) sont respectivement de 0,98, 0,48, 0,31 eV pour les camphres synthétiques, du Japon, de Chine.

2) EN ONDES CENTIMÉTRIQUES (fig. 1) nous notons, comme Powles, une absorption Debye au-dessus du point de transition, avec maximum de  $\varepsilon''$  vers 300° K environ. Mais, contrairement à ce qui se passait au-dessous du point de transition, ici les trois camphres montrent sensiblement le même phénomène. Il s'agit donc, en ondes centimétriques, d'un phénomène différent de celui observé en ondes kilométriques (2).

### III. — L'influence de l'impureté fenchone sur les propriétés diélectriques du camphre naturel.

1) FENCHONE PURE. — Ces résultats nous ont conduit à supposer que si les phénomènes observés en ondes centimétriques étaient bien propres au

FIG. 3. — Fenchone + Camphre naturel  $\nu = 10$  KHz.

camphre, ceux signalés en ondes kilométriques pouvaient être dus à une impureté contenue dans le camphre : la Fenchone (3).

(2) D'après Powles, l'énergie d'activation est ici de 0,15 eV environ.

(3) C'est sur les conseils de M. Salmon-Legagneur, Professeur de Chimie à la Faculté des Sciences de Rennes, que nous avons été conduite à étudier la fenchone, isomère du camphre qu'il est très difficile de séparer de lui.



Comme le montrent les figures 3 et 4, nous avons retrouvé pour la fenchone pure la même bande Debye que pour le camphre synthétique, mais environ dix fois plus intense; l'énergie d'activation est ici de  $1,35 \pm 0,05$  eV environ. Soulignons que, pour la fenchone pure, il n'y a pas de point de transition net mais seulement une légère anomalie de la courbe  $\epsilon' - T$  vers  $180^\circ$  K approximativement.

2) INTRODUCTION DE LA FENCHONE COMME IMPURETÉ DANS LE CAMPHRE NATUREL. — Ce qui précède nous a donc amené à introduire systématiquement de la fenchone dans le camphre naturel. La figure 3 compare, pour la fréquence de 10 kHz, les absorptions  $\lg \delta$  pour les concentrations de 100, 20,9 et 6 % en poids de fenchone dans le camphre naturel du Japon (4). La figure 4 donne les courbes

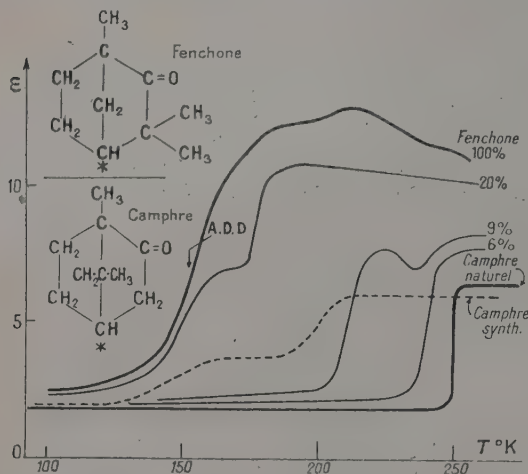


FIG. 4.

correspondantes pour la constante diélectrique  $\epsilon'$ . Enfin la figure 5 résume l'ensemble de ces résultats par la représentation  $\log v_c - 1/T$ . On en tire les conclusions suivantes :

A) Absorption dipolaire Debye (fig. 3). — En ce qui concerne les intensités, on voit que la bande est sensiblement aussi intense pour 20 % que pour 100 %; l'intensité du maximum décroît rapidement en passant de 20 à 9 et 6 % : ceci montre l'influence de quantités relativement faibles d'impuretés. Notons, par ailleurs, que la bande a sensiblement la même intensité pour la fenchone 9 % que pour le camphre synthétique.

En apparence, la position des bandes en fonction

(4) La fenchone a été introduite dans le camphre en portant le mélange des deux produits à la température de fusion et en refroidissant rapidement; signalons une évolution assez lente des propriétés diélectriques, après solidification.

de la concentration (pour la fréquence 10 KHz, fig. 3) semble varier de façon bizarre; mais il n'en est rien et la figure 5 explique cette allure des

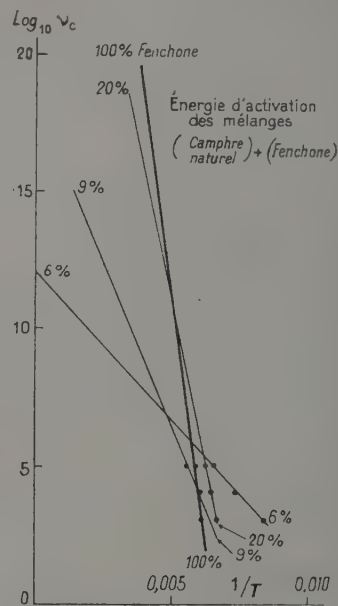


FIG. 5.

variations : c'est que l'énergie d'activation  $U$  ainsi que le terme  $A$  de la formule  $v_c = A \exp(-U/kT)$  croissent tous deux rapidement avec la quantité de fenchone ajoutée au camphre. Il en résulte que les diverses droites  $\log v_c - 1/T$  se croisent.

#### VALEURS DE L'ÉNERGIE D'ACTIVATION $U$

Fenchone pure .....	$1,35 \pm 0,05$ eV
20 % .....	1,20
9 % .....	0,50
6 % .....	0,22
Camphre synthétique .....	0,98 à 0,65 eV environ selon le mode de refroidissement.
Camphre du Japon .....	0,48
Camphre de Chine .....	0,31

Il serait d'ailleurs intéressant de reprendre systématiquement ces expériences pour une plus grande gamme de concentrations.

B) Changements de phase (fig. 4). — Nous avons déjà signalé l'existence de deux changements de phase distincts pour le camphre pur et pour le camphre synthétique, transitions décelées par des discontinuités de la courbe  $\epsilon' - T$ . L'introduction de fenchone dans le camphre naturel montre qu'il y a changement de phase et que la température dépend de la teneur en fenchone.



	$T_1$ °K	$T_2$ °K	$T_3$ °K
Fenchone pure	vers 180° K (peu marqué)	—	pas examiné
20 %	172° K	—	»
Camphre synthé- tique	190 à 205 selon traitement	—	»
9 % .....	205	235	»
6 % .....	—	235	»
Camphre naturel.	—	245	363 (Powles)

IV. — **Autres dérivés du camphre et influence des impuretés.** — *La fenchone brute* (que nous devons à l'amabilité de M. Lamand, d'Angers) d'où nous avons extrait par distillation sous vide la fenchone étudiée plus haut, présentait deux bandes dipolaires Debye : l'une qui persiste après distillation ( $U = 1,35$  eV.) (voir fig. 3), l'autre qui disparaît et correspond donc à une impureté ( $U = 1,02$  eV, environ).

Cette observation nous a conduit à examiner d'autres dérivés du camphre : chlorure et bromure de camphre, anhydride camphorique, isobornéol. Seul, l'isobornéol a montré des effets diélectriques particulièrement intéressants : Changement de phase à 277° K. Présence de trois bandes Debye correspondant à des énergies d'activation 1,2, 0,60 et 0,47 eV. Que ces bandes soient propres à l'isobornéol ou à des impuretés, ces expériences préliminaires montrent l'intérêt que présenterait une étude systématique des terpènes — aussi purs que possible — et de leur mélange.

V. — **Propriétés diélectriques des dérivés du camphre et structure des solides.** — Deux faits importants ressortent de ces expériences : La

température du changement de phase varie avec la teneur en impureté fenchone dans le camphre (fig. 4). Ce phénomène est sans doute lié aux variations des possibilités de rotation des groupements dans le réseau cristallin.

L'absorption dipolaire Debye a été aussi interprétée, pendant longtemps, par des rotations de groupements de la molécule. Le fait que la fenchone — et non pas le camphre — présente la bande Debye aurait pu s'expliquer dans cette voie : il y aurait dans le camphre un empêchement stérique à la rotation ; mais il nous semble que ce serait, au contraire, plutôt le cas de la fenchone (v. formules fig. 4). Nous proposons donc d'interpréter l'absorption Debye des dérivés du camphre en faisant jouer un rôle aux électrons : le dipôle (qui s'oriente dans le champ de haute fréquence, apparaîtrait dans la fenchone par suite du voisinage de  $C = O$  et de  $C(CH_3)_2$  et d'un échange d'électrons entre ces groupements. Il serait donc intéressant de rapprocher ces données de celles de la fluorescence et de l'absorption.

Manuscrit reçu le 24 novembre 1955.

#### BIBLIOGRAPHIE

- [1] FREYMANN (M<sup>me</sup> M.), *C. R. Acad. Sc.*, 1951, **233**, 1449.
- [2] FREYMANN (M<sup>me</sup> M.) et FREYMANN (R.), *J. Physique Rad.*, 1953, **14**, 203 ; 1954, **15**, 165 ; 1954, **15**, 217.
- [3] GENDREL (P.), Diplôme Études Supérieures, Rennes 1955 (Tirage limité).
- [4] GOLTZMAN et RASKIN, (U. Leningrad) *Dokl. Akad. Nauk S. S. S. R.*, 1953.
- [5] POWLES (J. G.), *J. Chem. Phys.*, 1952, **20**, 1648.
- [6] SACK (R. A.), *Australian J. Sc. Research*, A 1952, **5**, 135.
- [7] YAGER (W. A.) et MORGAN (S. O.), *J. Amer. Chem. Soc.*, 1935, **57**, 2071.



# DISPERSION ET ABSORPTION MAGNÉTIQUES DU FER ENTRE 0 ET 7 000 MÉGAHERTZ <sup>(1)</sup>

Par ERNST NASCHKE,

Laboratoire de Haute Fréquence, Grenoble.

**Sommaire.** — Dans cette étude nous avons réalisé les premières mesures de la perméabilité magnétique complexe initiale dans une gamme de fréquences étendue (de 0 à 7 000 MHz) sur le même échantillon ferromagnétique. Par des traitements thermiques des échantillons nous avons agrandi les domaines de Weiss, déplaçant ainsi la dispersion ferromagnétique due aux mouvements des parois vers des fréquences plus basses alors que les effets de la rotation des spins électroniques restent confinés dans les fréquences supérieures à quelques centaines de mégahertz. Cette séparation nous a permis de comparer les théories de la dispersion ferromagnétique due aux mouvements des parois, établies par Becker, Kittel, Polivanow et Néel.

**Avant-propos.** — Dans une étude récente : « L'influence de la subdivision en domaines élémentaires sur la perméabilité en haute fréquence des corps ferromagnétiques conducteurs » Néel [1] a suggéré l'étude expérimentale, dans une gamme étendue de fréquences, de la dispersion magnétique du fer traité de manière à contenir des domaines élémentaires aussi grands que possible. Car si les domaines sont grands, la dispersion due aux mouvements des parois a lieu aux fréquences assez basses et se distingue donc mieux de l'effet de la rotation des spins électroniques qui reste confiné dans les fréquences supérieures à quelques centaines de mégahertz. Grâce à cette séparation, le contrôle des théories de la dispersion magnétique due aux mouvements des parois [1, 2, 3, 4] doit être plus efficace.

Les propriétés des substances ferromagnétiques sont parfaitement définies par la connaissance de :

La constance diélectrique complexe  $\epsilon$  :

$$\epsilon = \epsilon_1 - j\epsilon_2 = \epsilon_0 \epsilon_r = \epsilon_0 (\epsilon_{1r} - j\epsilon_{2r}) = \epsilon_0 \epsilon_{1r} (1 - j \operatorname{tg} \delta_e)$$

où :  $\epsilon_0$  est la constante diélectrique du vide égale à :

$\epsilon_r$  est la constante diélectrique relative complexe égale à :  $\epsilon/\epsilon_0$ ,

$\delta_e$  est l'angle de pertes diélectriques égal à :

$$\frac{10^{-9}}{36 \pi} \text{ Farad/mètre}$$

$\operatorname{arc} \operatorname{tg} (\epsilon_{2r}/\epsilon_{1r})$ .

La perméabilité initiale complexe  $\mu$  :

$$\mu = \mu_1 - j\mu_2 = \mu_0 \mu_r = \mu_0 (\mu_{1r} - j\mu_{2r}) = \mu_0 \mu_{1r} (1 - j \operatorname{tg} \delta_m)$$

où :  $\mu_0$  est la perméabilité du vide égale à :

$$4\pi \cdot 10^{-7} \text{ Henry/mètre,}$$

$\mu_r$  est la perméabilité relative complexe égale à :  $\mu/\mu_0$ ,

<sup>(1)</sup> Extrait de la thèse de l'auteur.

$\delta_m$  est l'angle de pertes magnétiques égal à :  $\operatorname{arc} \operatorname{tg} (\mu_{2r}/\mu_{1r})$ .

La perméabilité varie avec la fréquence mais aussi avec l'intensité du champ magnétique environnant. Nous nous intéressons plus particulièrement à la variation en fonction de la fréquence de  $\mu_{\text{initiale}}$  qui, dans la pratique est obtenue par des mesures dans des champs magnétiques très faibles. Dans la suite de cet exposé, nous emploierons le symbole  $\mu$  pour désigner les valeurs initiales de la perméabilité et le symbole  $\mu_{\infty}$  pour le cas particulier de la perméabilité initiale statique.

La susceptibilité  $\chi$  est liée à la perméabilité par la relation :

$$\mu_r = 1 + 4\pi\chi.$$

Les mesures ont été faites sur un fil de fer écroui et sur des fils ayant subi des recuits de cinq heures à diverses températures dans l'hydrogène soigneusement purifié. Pour les différentes gammes de fréquences on a utilisé les méthodes suivantes <sup>(2)</sup> pour déterminer la perméabilité :

1)  $f = 0$  : mesure de variation de flux magnétique avec et sans fils de fer à l'intérieur d'une bobine très petite ; on en a déduit la perméabilité initiale statique  $\mu_{\infty}$ .

2)  $f = 0,4$  à 60 MHz : mesure au pont de Schering de l'impédance d'une ligne courte (ligne double en fil de fer de 0,4 à 7 MHz et ligne coaxiale où le conducteur central est le fil de fer de 7 à 60 MHz) ; on en déduit  $\mu_1$  et  $\mu_2$ .

3)  $f = 150$  à 7 000 MHz : le fil constitue le conducteur central d'une ligne coaxiale de longueur réglable (trois lignes différentes pour couvrir la bande ci-dessus) ; on utilise la méthode de Wieberdink [7] pour calculer  $\mu_1$  et  $\mu_2$ .

**Théories récentes sur la dispersion magnétique due à la dynamique des parois.**

Les corps ferromagnétiques sont divisés en

<sup>(2)</sup> Pour les détails voir [5], [6].



petits volumes possédant une aimantation spontanée. Ce sont les « domaines » de Weiss (voir par exemple Becker-Döring [2]). Dans un domaine donné les spins électroniques ont la même orientation mais d'un domaine à l'autre cette orientation varie. Sous l'influence d'un champ faible les parois qui séparent les domaines se déplacent réversiblement de façon que les volumes des domaines orientés dans la direction du champ appliqué — « domaines favorisés » — s'agrandissent aux dépens des volumes des domaines aimantés dans d'autres directions — « non favorisés » — Les déplacements s'accompagnent de micro-courants induits qui tendent à les freiner. C'est Arkadiew qui a le premier suggéré que ces micro-courants pourraient avoir une grande importance dans la dispersion magnétique.

**Théorie de Becker [2].** — Becker a réalisé pour la première fois un calcul sur l'amortissement produit par les parois planes circulaires, normales à l'aimantation spontanée se déplaçant à l'intérieur d'un corps sous l'action d'un champ magnétique sinusoïdal.

Dans cette théorie le déplacement d'une paroi est déterminé à chaque instant par l'état d'équilibre entre deux forces s'exerçant sur la paroi. L'origine de l'une est le champ magnétique appliqué et l'autre résulte d'une force de rappel élastique et d'une force de frottement proportionnelle à la vitesse du déplacement de la paroi. Avec ces hypothèses, Becker écrit l'équation du déplacement de la paroi et obtient pour la susceptibilité complexe  $\chi = \chi_1 - j\chi_2$  l'expression :

$$\frac{\chi}{\chi_{\infty}} = \frac{\mu_r - 1}{\mu_r - 1} = \frac{1}{1 + j\omega/\omega_c} \quad (1)$$

où  $\omega_c$  est une pulsation critique qui détermine un temps de relaxation  $2\pi/\omega_c$  et  $\chi_{\infty}$  la susceptibilité statique.

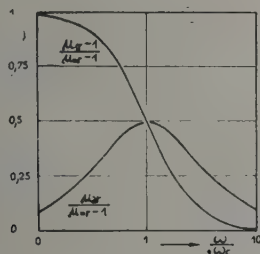


FIG. 1.

La figure 1 montre l'évolution de  $(\mu_r - 1) / (\mu_r - 1)$  en fonction de  $\omega/\omega_c$  d'après (1).

Les objections qu'on peut faire à cette théorie sont les suivantes :

Dans les calculs Becker suppose que l'épaisseur de peau est plus grande que les dimensions des

domaines. Or cette condition n'est pas réalisée dans les exemples numériques donnés par Becker lui-même pour le fer ( $\omega_c/2\pi = 2\,000$  MHz ou 20 MHz suivant que l'on adopte pour dimension linéaires des domaines  $10^{-4}$  cm ou  $10^{-3}$  cm).

D'autre part, d'après Néel [8] la paroi considérée par Becker, séparant deux domaines élémentaires aimantés antiparallèlement et normalement à la paroi porterait une énorme densité de charges magnétiques et ne peut certainement pas exister. Cela veut dire que l'amortissement donné par l'équation [1] est trop grand.

Cependant Becker a eu le mérite d'indiquer ainsi une nouvelle méthode pour déterminer les dimensions des domaines élémentaires à partir des mesures de la perméabilité en haute fréquence.

**Théorie de Kittel [3].** — Dans la théorie de Kittel la décroissance de la perméabilité serait due à la pénétration incomplète du champ alternatif appliqué. Pour le calcul il envisage un film du métal ferromagnétique consistant en une seule couche de domaines. L'épaisseur du film est plus grande que l'épaisseur de peau ou du même ordre et plus grande que la longueur du domaine (direction parallèle à l'aimantation spontanée). Cette couche est parallèle au champ magnétique alternatif appliqué et les domaines ont une aimantation spontanée parallèle ou anti-parallèle au champ magnétique alternatif appliqué. Les parois sont supposées rigides et doivent se déplacer d'un seul bloc, parallèlement à elles-mêmes.

Kittel donne une solution des équations de Maxwell pour ce modèle. Il obtient ainsi, pour l'impédance de surface, une expression qu'il compare à celle qui provient des équations classiques des micro-courants. Cette comparaison permet de calculer :  $\mu_{Rr} = \mu_R/\mu_0$  et  $\mu_{Lr} = \mu_L/\mu_0$  à l'aide des équations :

$$\begin{aligned} \text{Re}[u_{Rr}^{1/2} \cdot \tan h(p d_K \cdot u_{Rr}^{1/2})] \\ = \text{Re} \frac{\tan h(p d_K)}{1 - (1 - 1/\mu_{Rr}) \cdot \tan h(p d_K)/p d_K} \end{aligned} \quad (2)$$

$$\begin{aligned} \text{Im}[u_{Lr}^{1/2} \cdot \tan h(p d_K \cdot u_{Lr}^{1/2})] \\ = \text{Im} \frac{\tan h(p d_K)}{1 - (1 - 1/\mu_{Lr}) \cdot \tan h(p d_K)/p d_K} \end{aligned} \quad (3)$$

où  $p = \sqrt{j\sigma\omega\mu_{\infty}}$ ,  $2d_K$  = l'épaisseur du film et  $\mu_{\infty}$  = la perméabilité initiale statique.

Les symboles  $\mu_R$  et  $\mu_L$  sont définis (voir par exemple Benoit [9]) par les relations :

$$\text{Re}(Z_s) = \frac{1}{s} \sqrt{\frac{\mu_R \cdot \omega}{2\sigma}} \quad \text{et} \quad \text{Im}(Z_s) = \frac{1}{s} \sqrt{\frac{\mu_L \cdot \omega}{2\sigma}}$$

avec  $Z_s$  = impédance de surface et  $s$  = section de l'échantillon, d'où on peut déduire aux très hautes fréquences :

$$\mu_R = \sqrt{\mu_1^2 + \mu_2^2} + \mu_2 \quad \mu_L = \sqrt{\mu_1^2 + \mu_2^2} - \mu_2 \quad (4)$$



on

$$\mu_1 = \sqrt{\mu_R \cdot \mu_L} \quad \mu_2 = \frac{1}{2} \cdot (\mu_R + \mu_L) \quad (5)$$

**Remarque :** Dans le cas général, il n'y a pas de relation simple entre  $\mu_R$ ,  $\mu_L$  et  $\mu_1$ ,  $\mu_2$ .

Les courbes théoriques traduisant (d'après la théorie de Kittel) l'évolution de  $\mu$  en fonction de  $[(pd_K)^2]$  pour  $\mu_R = 100$  sont données par la figure 2.

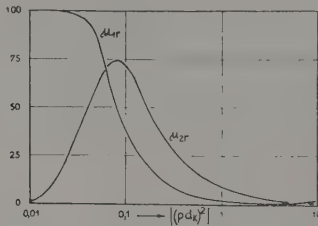


FIG. 2.

Dans cette théorie on peut mettre en doute la validité de l'hypothèse essentielle des parois rigides et d'après Néel [1] il est plus correct de supposer les parois « infiniment » souples.

**Remarque :** Le maximum de  $\mu_{2r}$  ne peut être tracé de façon précise à partir des valeurs de  $\mu_R$  et  $\mu_L$  données par Kittel [3].

**Théorie de Polivanow** [4]. — Polivanow a étudié un échantillon de métal ferromagnétique avec des domaines lamellaires d'épaisseur  $d$  dont les parois sont parallèles à la surface et au champ magnétique alternatif appliqué. La résolution des équations de Maxwell pour les domaines successifs donne la perméabilité complexe  $\mu = \mu_1 - j\mu_2$  en fonction d'un seul paramètre :

$$a = \frac{\mu_0(\mu_R - 1)d^2 \omega \sigma}{4} \quad (6)$$

par l'équation :

$$\frac{\mu}{\mu_0} = (\sqrt{1 + ja} - \sqrt{ja})^2 \quad (7)$$

Dans le cas, où les domaines successifs sont orientés à « 90° », Polivanow trouve :

$$\frac{\mu}{\mu_0} = 1 - \frac{1}{ja} \left( \sqrt{1 + \frac{ja}{\mu_R}} - \sqrt{\frac{ja}{\mu_R}} \right)^2 \quad (8)$$

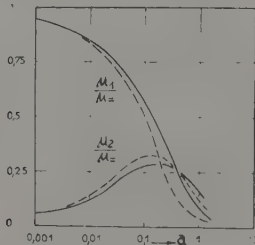


FIG. 3.

La figure 3 donne les courbes de  $\mu$  en fonction de  $a$  d'après les équations (7) (trait plein) et (8) (trait interrompu).

**Théorie de Néel** [1]. — Néel a étudié le cas où, dans le voisinage de la surface d'un corps ferromagnétique conducteur, les domaines élémentaires sont des feuillets plans parallèles d'épaisseur  $d$ , perpendiculaires à la surface, aimantés alternativement en sens inverses parallèlement à la surface et au champ magnétique alternatif appliqué. En supposant les parois infiniment souples et extensibles sans dépenses d'énergie, Néel donne une solution du problème en fonction du même paramètre  $a$  (équation 6) que Polivanow :

$$\frac{\mu_R}{\mu_R - 1} = A^2 \quad (9)$$

avec :

$$A = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2r^3 \left( 1 + \frac{r^2}{4\pi\chi_n + \varphi_n^2} \right)^{1/2}}{\varphi_n(\varphi_n^2 + r^2 + r^4)} \quad (10)$$

où  $\varphi_1, \varphi_2, \dots, \varphi_n$  sont les racines successives de l'équation transcendante complexe

$$\varphi \lg \varphi = r^2 \quad \text{et} \quad r^2 = ja.$$

Les courbes de  $\mu$  en fonction de  $a$  d'après l'équation (9) sont représentées sur la figure 4.

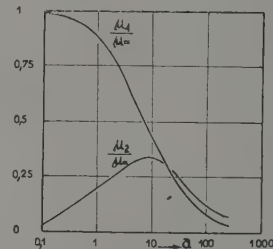


FIG. 4.

Pour les domaines de faibles épaisseurs, Néel développe ensuite une autre théorie qui tient compte de la tension superficielle de paroi. Il serait intéressant, en adaptant cette deuxième théorie au cas des domaines d'épaisseur quelconque, de pouvoir évaluer l'erreur que l'on commet dans le cas général en négligeant la tension superficielle de paroi. En tous cas, la comparaison des résultats expérimentaux (voir plus loin) avec les courbes théoriques de la figure 4 ne permet pas de déceler l'influence de la tension superficielle de paroi, si l'épaisseur des domaines est supérieure à quelques microns.

**Comparaison des courbes traduisant les théories précédentes** (courbes de  $\mu = \mu_1 - j\mu_2$  en fonction de la fréquence).

En examinant les courbes de  $\mu = g(f)$  d'après

les différentes théories (fig. 1, 2, 3, 4) on constate que l'allure générale est la même :

Aux basses fréquences  $\mu_1 = g_1(f)$  est d'abord égale à  $\mu_{\infty}$  puis décroît de plus en plus à mesure que la fréquence s'élève (à l'exception de la courbe de Kittel (fig. 2) qui présente un minimum défini inférieur à l'unité).

$\mu_2 = g_2(f)$ , d'abord sensiblement nulle aux basses fréquences, croît avec la fréquence, passe par un maximum et tend ensuite vers zéro.

Si nous classons les différentes théories par la valeur maximum que prend dans chacune d'elles la pente de la courbe  $\mu_1 = g_1(f)$  nous aurons par ordre décroissant les théories de Kittel (fig. 2), Becker (fig. 1), Néel (fig. 4) et Polivanow (fig. 3). Nous trouverons le même classement en considérant cette fois les valeurs décroissantes des maxima de  $\mu_2 = g_2(f)$ .

Cependant dans les courbes théoriques tracées d'après Néel (fig. 4) et Polivanow (fig. 3) les pentes maxima de  $\mu_1 = g_1(f)$  et les valeurs des maxima de  $\mu_2 = g_2(f)$  ne se distinguent pas beaucoup. Mais il faut remarquer que la fréquence, pour laquelle  $\mu_1/\mu_{\infty} = 0,5$  est environ cinquante fois plus petite chez Polivanow (fig. 3) que chez Néel (fig. 4).

#### Résultats expérimentaux et leur comparaison avec les théories récentes.

**Résultats expérimentaux.** — LE FIL ÉTUDIÉ ET SES TRAITEMENTS. — Nous nous sommes servis de fil de fer « Armco » mis à notre disposition par « Gilby Wire S. A. » (diamètre du fil 0,1 mm et sa résistance par mètre : 14,48  $\Omega$  à 20 °C).

L'analyse chimique faite par l'Institut d'Électrochimie de Grenoble a donné pour le fil écroui la teneur suivante en impuretés :

C, 0,107 % ; S, 0,020 % ; Si < 0,010 % ; P, 0,007 % ;  
Cu, 0,095 % ; Mn, 0,043 %.

Nous avons mesuré la perméabilité complexe initiale  $\mu = \mu_1 - j\mu_2$  de 0 à 7 000 MHz du fil écroui et de tronçons de fil recuits dans un tube de quartz pendant 5 heures à diverses températures (500, 700, 800, 870, 960, 1 020, 1 100, 1 160 et 1 220 °C) en atmosphère d'hydrogène soigneusement purifié (refroidi à 64 °K, passé à environ 830 °C sur du cuivre pur et enfin desséché à travers un tube contenant potasse et anhydride phosphorique). Pendant les recuits le fil était placé sur un support de stéatite.

Malgré ces précautions, les dernières traces d'oxygène présentes dans l'hydrogène ont provoqué, pour les premiers échantillons d'essai, l'oxydation de l'extrémité proche de l'arrivée d'hydrogène. Nous avons alors interposé entre cette arrivée d'hydrogène et l'échantillon un ou plusieurs tampons. Chacun des tampons se composait d'un éche-

veau du même fil que l'échantillon, et absorbait les traces d'oxygène. Dans ces conditions l'échantillon destiné aux mesures ne présentait plus aucune marque d'oxydation.

**RÉSULTATS.** — Les résultats obtenus par les différentes méthodes de mesures (voir page 330) en fonction de la fréquence se sont raccordés d'une façon très satisfaisante. Ils sont condensés dans les figures 5 à 14.

*Remarque :* Pour contrôler que la variation de  $\mu$  en fonction de la fréquence est due uniquement à la dispersion ferromagnétique et non aux variations de  $\mu$  le long d'un rayon à l'intérieur du fil, nous avons vérifié sur quelques échantillons d'un diamètre différent (0,2 mm) que les valeurs de  $\mu$  étaient les mêmes que précédemment tout le long du domaine de fréquences ! Il est donc inutile de se préoccuper dans notre cas d'une éventuelle dépendance entre  $\mu$  et la profondeur dans le fil.

Pour le fil écroui (fig. 5) et le fil recuit à 500 °C (fig. 6) la dispersion n'est notable qu'aux fréquences supérieures à environ 100 MHz alors que pour les fils recuits à 800 °C et au delà, on trouve que la dispersion de  $\mu_1$  commence dès 5 MHz. En général on peut constater que plus la perméabilité initiale statique  $\mu_{\infty}$  est grande, plus basse est la fréquence où la dispersion commence, plus forte est la pente de  $\mu_1$  et élevé est le maximum de  $\mu_2$ .

**Comparaison des résultats expérimentaux avec les théories récentes.** — Pour le fil écroui et le fil recuit à 500 °C (voir fig. 5 et 6) on trouve que la dispersion n'est notable qu'aux fréquences supérieures à environ 100 MHz ; à de telles fréquences les effets des mouvements de parois sont difficiles à distinguer des effets des rotations des spins. La comparaison avec une théorie de la dynamique des parois est alors illusoire.

Par contre, pour les fils recuits à 800 °C et au delà, on trouve que la dispersion de  $\mu_1$  commence dès 5 MHz. Il est alors raisonnable de comparer les résultats expérimentaux aux courbes théoriques. Cette comparaison montre que la courbe théorique de Néel est la plus satisfaisante.

Particulièrement on peut constater que la chute de  $\mu_1$  prévue par la théorie de Becker (fig. 1) et de Kittel (fig. 2) est plus rapide que la chute observée expérimentalement. Cela confirme les objections faites au sujet des modèles des domaines élémentaires adoptés par Becker pour le développement de sa théorie.

Les figures 15 à 22 montrent les courbes théoriques de la perméabilité complexe en fonction de  $\alpha$  (voir équation 6) d'après Néel [1] et les points expérimentaux pour les échantillons recuits à 700, 800, 870, 960, 1 020, 1 100, 1 160 et 1 220 °C.

Le changement d'échelle des abscisses entre les figures 7 à 14 et les figures 15 à 22 a été choisi de fa-



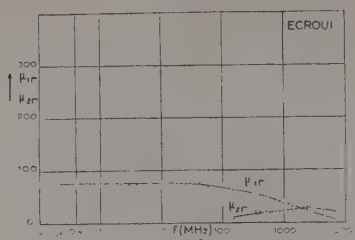


FIG. 5.

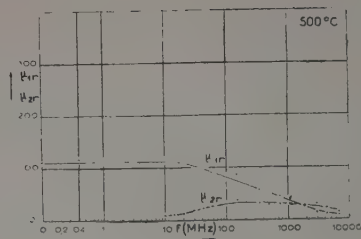


FIG. 6.

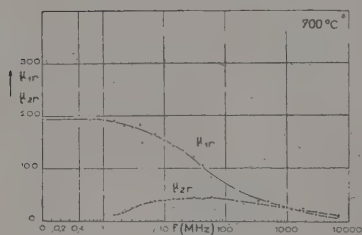


FIG. 7.

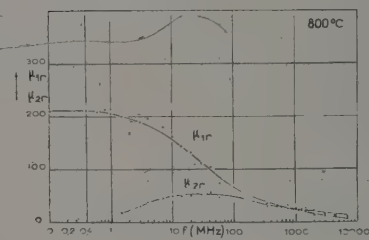


FIG. 8.

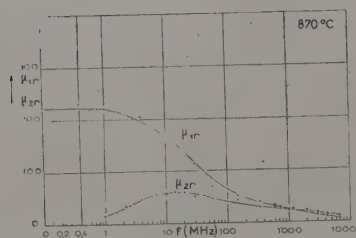


FIG. 9.

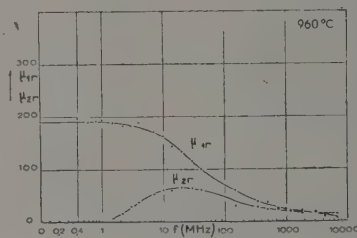


FIG. 10.

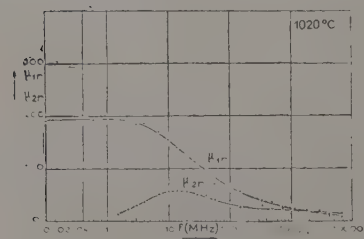


FIG. 11.

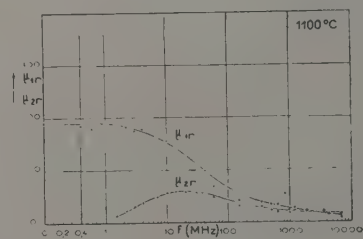


FIG. 12.

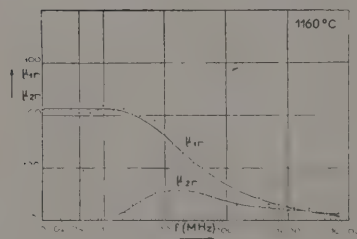


FIG. 13.

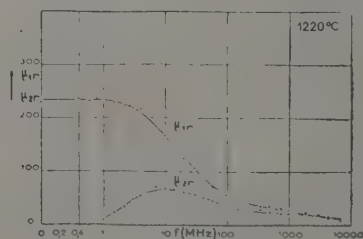


FIG. 14.

çon à obtenir pour la fréquence où  $\mu_1/\mu_2 = 0,5$  la valeur  $a = 7,2$  (conforme à la théorie de Néel).

On constate sur les figures 15 à 22 que de  $a = 0$  à  $a = 50$  environ (ce qui correspond pour le fil recuit à 800 °C par exemple aux fréquences d'environ 0,8 à 150 MHz) l'accord est très satisfaisant pour  $\mu_1$ .

La plus grande partie de la dispersion est alors attribuable à la dynamique des parois.

Une comparaison quantitative pour  $\mu_2$  est plus difficile car les valeurs expérimentales de  $\mu_2$  sont bien moins précises. Il est néanmoins net que pour  $a > 50$ ,  $\mu_2$  est plus grand que ne pourrait l'expliquer la seule dynamique des parois.

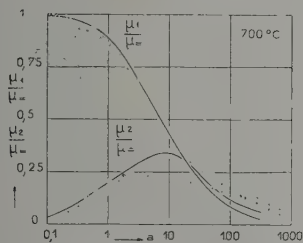


FIG. 15.

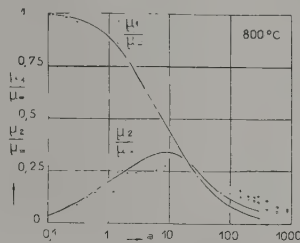


FIG. 16.

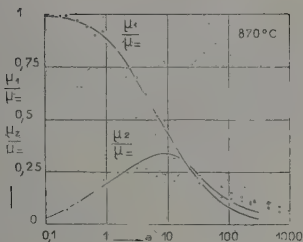


FIG. 17.

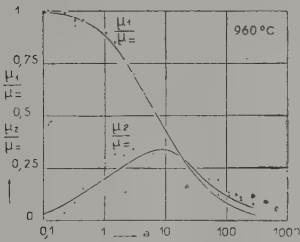


FIG. 18.

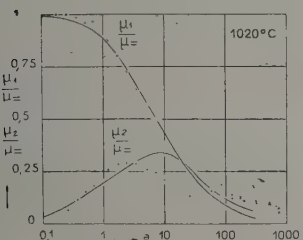


FIG. 19.

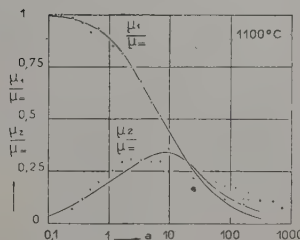


FIG. 20.

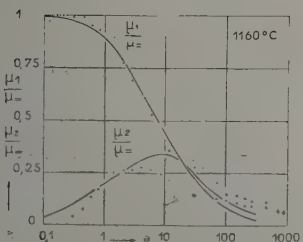


FIG. 21.

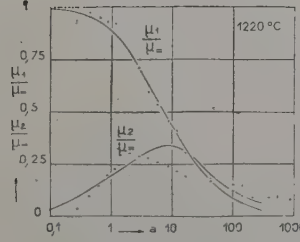


FIG. 22.



**Influence de l'épaisseur des domaines de Weiss sur la perméabilité initiale en haute fréquences.** — Toujours d'après Néel [1], lorsqu'on connaît la fréquence où  $\mu_1/\mu_\infty$  est égal à 0,5 pour  $a = 7,2$  on peut déduire de l'équation (6) une valeur statistique de l'épaisseur  $d$  des domaines ( $\mu_\infty$  et  $\sigma$  étant supposés mesurés).

En faisant ce calcul on obtient les valeurs suivantes :

TABLEAU I

FIL RECUIT A	$d$
0 °C	$2,36 \times 10^{-4}$ cm
500 °C	$3,26 \times 10^{-4}$ cm
700 °C	$6,65 \times 10^{-4}$ cm
800 °C	$7,45 \times 10^{-4}$ cm
870 °C	$7,6 \times 10^{-4}$ cm
960 °C	$6,73 \times 10^{-4}$ cm
1.020 °C	$7,15 \times 10^{-4}$ cm
1.100 °C	$7,05 \times 10^{-4}$ cm
1.160 °C	$7,45 \times 10^{-4}$ cm
1.220 °C	$8,41 \times 10^{-4}$ cm

En faisant le même calcul à partir de la théorie de Polivanow (avec  $a = 0,145$  pour  $\mu_1/\mu_\infty = 0,5$  dans le cas de domaines successifs orientés à  $180^\circ$ ) on obtient pour chaque échantillon des dimensions de domaines environ sept fois plus petites.

Les valeurs pour le fil écroui et le fil recuit à  $500^\circ$  C sont moins sûres parce que (comme déjà dit plus haut) les fréquences où  $\mu_1/\mu_\infty$  est égal à 0,5 sont 1 000 MHz et 360 MHz et à de telles fréquences les effets des mouvements de parois sont difficiles à distinguer de ceux des rotations des spins électroniques. Tout ce qu'on peut dire, c'est que dans ces deux cas on a ainsi une limite supérieure de la dimension  $d$  des domaines et que la petitesse des domaines est bien conforme avec le fait que la dispersion de  $\mu_1$  a lieu aux fréquences élevées.

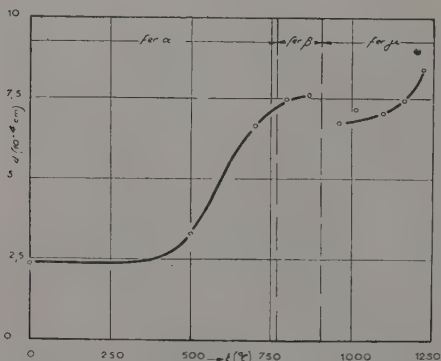


FIG. 23.

La figure 23 montre l'évolution de l'épaisseur  $d$  des domaines suivant la température  $t$  en °C du recuit subi par le fil étudié. Cette épaisseur croît assez vite avec  $t$  pour le fer  $\alpha$  et  $\beta$  au fur et à mesure

de la croissance des mailles du réseau cristallin donc de la vitesse de diffusion du carbone, pendant les recuits. Après la discontinuité correspondant à la température de transition au fer  $\gamma$ , la vitesse de diffusion du carbone est du même ordre de grandeur que dans le fer  $\beta$  recuit à  $800^\circ$  C par exemple et les domaines obtenus ont à peu près la même épaisseur.

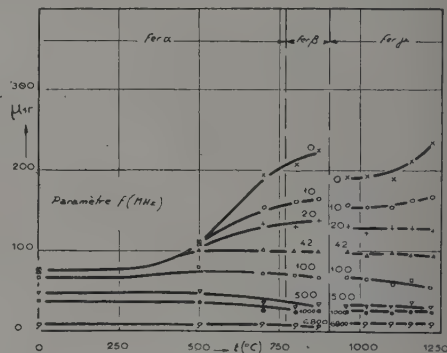


FIG. 24.

La figure 24 montre la variation de  $\mu_{1r}$ , en fonction de la température du recuit (donc de la dimension des domaines) pour les diverses fréquences de mesures.

On constate qu'aux fréquences zéro ou pas trop élevées,  $\mu_{1r}$  varie beaucoup en fonction de la grosseur des domaines et subit comme celle-ci une discontinuité correspondant au point de transition du fer  $\alpha - \beta$  au fer  $\gamma$  au cours des recuits. Au contraire, à partir de 100 MHz,  $\mu_{1r}$  ne varie que très peu avec  $t$  donc avec la grosseur des domaines. Ceci met bien en évidence la disparition du rôle de la dynamique des parois au profit de celui des rotations des spins.

D'autre part, on constate que plus les domaines sont gros plus la variation de  $\mu_{1r}$ , aux fréquences peu élevées est rapide. Autrement dit, la zone de fréquence où la dynamique des parois a le rôle primordial se sépare d'autant mieux de celle où seule la rotation des spins intervient, que les domaines sont plus gros.

**Contrôle par la méthode de Bitter des valeurs de l'épaisseur des domaines de Weiss calculés d'après la théorie de Néel [1].** — Pour contrôler d'une manière assez efficace, les valeurs de  $d$  calculées d'après l'équation (6) et données dans le tableau 1, nous avons fait polir électrolytiquement quelques fragments des fils étudiés<sup>(3)</sup>. Les domaines magnétiques de la surface peuvent alors être rendus visibles par la méthode de Bitter [10].

Sur une surface bien polie de l'échantillon on

<sup>(3)</sup> Je remercie Monsieur I. Epelboin du Laboratoire de Physique Enseignement, de la Faculté des Sciences de Paris, d'avoir bien voulu se charger de ce polissage.

dépose une suspension colloïdale contenant de l'oxyde de fer ( $\text{Fe}_2\text{O}_3$  ou  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ) en poudre très fine. Cette poudre s'agglomère sur les parois des domaines, et donne ainsi une image visible au microscope.

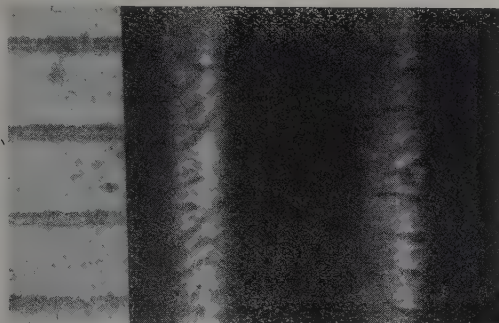


FIG. 25.

FIG. 26.

Les figures 25 et 26 sont des exemples de microphotographies qui peuvent être ensuite obtenues.

En raison du fort grossissement nécessaire et de la forme circulaire du fil, les deux photos ne montrent qu'une très faible surface au voisinage immédiat d'une génératrice.

La figure 25 donne côté à côté un diagramme de Bitter sans aucun champ magnétique externe, et une échelle étalonnée (une division = 20 microns). On peut ainsi constater que l'épaisseur moyenne des domaines a bien l'ordre de grandeur calculé d'après la théorie de Néel (voir tableau 1).

La figure 26 montre des domaines déformés par

l'application d'un champ magnétique externe perpendiculairement au plan de la figure.

**Conclusion.** — Les théories de Becker, Kittel, Polivanow présentent avec les résultats expérimentaux des points non négligeables de désaccord.

Dans les théories de Becker et Kittel la dispersion calculée théoriquement est nettement trop grande.

Les courbes théoriques de Polivanow se rapprochent déjà plus des courbes expérimentales, mais elles conduisent à une épaisseur de domaines beaucoup trop faible comparée aux diagrammes de Bitter.

Cette étude constitue un apport positif à la théorie proposée par Néel : les courbes théoriques concordent de façon très satisfaisante avec l'expérience, et l'épaisseur des domaines obtenue à partir de ces courbes théoriques, est de l'ordre de celle que donne l'étude des diagrammes de Bitter.

J'ai pu accomplir cette étude dans le Laboratoire de Haute Fréquence de la Faculté des Sciences de Grenoble sous la direction de M. le Pr Jean Benoit qui m'a accueilli avec bienveillance. C'est avec la plus vive reconnaissance que je le remercie des conseils précieux qu'il m'a constamment prodigués et de l'intérêt qu'il a porté à mes travaux.

J'exprime également ma profonde gratitude à M. le Pr Louis Néel qui m'a, en plus d'une circonstance, aidé de ses conseils éclairés, avec l'amabilité la plus grande.

Que M. Noël Le Junter soit remercié pour l'aide qu'il m'a prêtée dans la rédaction de cet article.

Manuscrit reçu le 12 novembre 1955.

#### BIBLIOGRAPHIE

- [1] NÉEL (L.), *Ann. Inst. Fourier de Grenoble*, 1951, **3**, 301.
- [2] BECKER (R.), DÖRING (W.), *Ferromagnetismus*. Springer, Berlin, 1939.
- [3] KITTEL (C.), *Phys. Rev.*, 1946, **70**, 281.
- [4] POLIVANOW (K.), *Bull. Acad. Sc., U. R. S. S.*, 1948, **12**, 98.
- [5] NASCHKE (E.), *Thèse*, Grenoble, soutenue le 18 décembre 1954.
- [6] BENOIT (J.) et NASCHKE (E.), *J. Physique Rad.*, janvier 1956. Lettre à la Rédaction.
- [7] WIEBERDINK, *Appl. Sc. Research*, B. 1, 1950, 439.
- [8] NÉEL (L.), *Ann. Inst. Polytechnique de Grenoble*, 1953, **2**, numéro spécial, p. 5.
- [9] BENOIT (J.), *Ann. Inst. Polytechnique de Grenoble*, 1953, **II**, n° 3, 35.
- [10] BITTER, *Phys. Rev.*, 1931, **38**, 1903.



## LA THÉORIE DES TEMPS DE RELAXATION EN RÉSONANCE QUADRUPOLAIRE

Institut Fourier, Faculté des Sciences, Grenoble.

par Yves AYANT,

**Sommaire.** — On développe une théorie quantitative des temps de relaxation en Résonance Quadrupolaire, en supposant un modèle mécanique simple des vibrations moléculaires responsables du couplage spin-milieu. Tout est déduit à partir des constantes de force et de couplage de ce modèle, déjà plus ou moins accessibles par l'effet Raman.

**Introduction.** — On sait que la cause prépondérante de relaxation en résonance quadrupolaire réside dans les fluctuations du gradient dues à des mouvements de libration de la liaison chimique [1]. Par exemple, dans le p-dichlorobenzène, les molécules sont animées de deux sortes de librations, l'une dans le plan moyen de la molécule, l'autre perpendiculairement à ce plan [2].

Si on désigne par  $\theta$  l'angle d'écart de la liaison avec sa position moyenne,  $1/T_1$  contient les densités spectrales de  $\theta$ , soit  $J_1(\omega)$ , et de  $\theta^2 - \bar{\theta}^2$ , soit  $J_2(\omega)$ , prises pour la (ou les) fréquences cycliques de résonance quadrupolaires (<sup>1</sup>). En fait, ces fréquences doivent être considérées comme très petites devant les fréquences mises en jeu par les mouvements moléculaires, et il est donc légitime de prendre les densités spectrales à la fréquence 0. Par exemple, pour un spin nucléaire  $I = 3/2$ , on a : [3]

$$1/T_1 = 3\pi\omega^2 \left[ J_1'(0) + \frac{1}{4} J_2(0) \right]. \quad (1)$$

( $\omega_\theta$  = fréquence cyclique quadrupolaire).

Dans cet article, nous montrerons qu'il est possible de calculer  $J_1(0)$  et  $J_2(0)$ , dans le cas où le modèle suivant est valable : les librateurs moléculaires sont tous identiques, formant donc une file homogène, ou un réseau homogène à deux ou trois dimensions ; chaque librateur n'est couplé qu'avec les librateurs voisins de la file, ou du réseau. (On néglige par exemple un couplage éventuel avec les ondes de Debye).

**1. Théorie générale (non quantique).** — Nous avons à faire à un système d'oscillateurs harmoniquement couplés, donc en prenant les notations habituelles :

$$2\tau = I \sum_i \dot{q}_i^2 \quad (\text{force vive})$$

$$2V = \sum_{ij} A_{ij} q_i q_j \quad (2 \times \text{énergie potentielle})$$

On fait une transformation unitaire réelle sur les

(<sup>1</sup>) La somme de deux fréquences de résonance consécutives intervient aussi, car  $\theta^2$  est couplé avec  $(I_{\pm})^2$ , ayant la règle de sélection  $\Delta m = \pm 2$ .

$q$  pour diagonaliser la matrice  $A$ , c'est-à-dire :

$$q_i = \sum_r S_{ir} \xi_r$$

de telle sorte que :

$$(S^{-1} A S)_{rs} = A'_{rs} \delta_{rs}.$$

Les  $\xi_r$  correspondent aux modes fondamentaux,  $\xi_r$  se meut comme le fait un oscillateur de fréquence propre :

$$\omega_r = (A'_r/I)^{1/2}$$

Ces fréquences propres forment un spectre très serré, et l'on introduira une densité  $D(\omega)$ , telle que :

$$\int_0^\infty d\omega D(\omega) = 1;$$

$ND(\omega) d\omega$  est le nombre de fréquences cycliques propres contenues dans  $d\omega$ , si  $N$  est le nombre total de degrés de liberté.

On tire de là la fonction de corrélation de  $q_i$ , soit :

$$K_{ii}(\tau) = \sum_{rs} \overline{S_{ir} \xi_r(t) S_{is} \xi_s(t+\tau)} \quad (2)$$

Il est clair que  $\xi_r$  et  $\xi_s$  sont totalement indépendants ( $r \neq s$ ) et par suite, les termes rectangles disparaissent dans (2). Pour évaluer les termes carrés, c'est-à-dire les fonctions de corrélation des  $\xi_r$  ; notons que :

$$\xi_r(t) = a \cos(\omega_r t + \theta)$$

$$\overline{\xi_r(t) \xi_r(t+\tau)} = \overline{a^2 \cos(\omega_r t + \theta) \cos(\omega_r t + \theta + \omega_r \tau)}$$

$$= \frac{1}{2} \overline{a^2} \cos \omega_r \tau = \overline{\xi_r^2} \cos \omega_r \tau.$$

On sait que :

$$A'_r \overline{\xi_r^2} = kT,$$

d'où finalement :

$$\overline{\xi_r(t) \xi_r(t+\tau)} = \frac{kT}{I\omega_r^2} \cos \omega_r \tau$$

$$K_{ii}(\tau) = \frac{kT}{I} \sum_r (S_{ir})^2 \frac{\cos \omega_r \tau}{\omega_r^2}$$

$\theta$  est l'un des  $q_i$  ; sa fonction de corrélation, soit

$K_1(\tau)$  est l'une des  $K_{ii}$ , et l'identité de tous les oscillateurs nous permet d'écrire :

$$K_1(\tau) = \frac{1}{N} \sum_i K_{ii}(\tau) = \frac{kT}{I} \frac{1}{N} \sum_r \frac{\cos \omega_r \tau}{\omega_r^2} \quad (3)$$

parce que :  $\sum_i (S_{ir})^2 = 1$  ( $S$  unitaire).

On exprimera (3) sous une forme intégrale, en faisant intervenir le densité des fréquences propres :

$$K_1(\tau) = \frac{kT}{I} \int_0^\infty d\omega D(\omega) \frac{\cos \omega \tau}{\omega^2} \quad (4)$$

Comme  $K_1(\tau)$  est lié à la densité spectrale  $J_1(\omega)$  par :

$$K_1(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega J_1(\omega) e^{i\omega\tau}$$

on déduit de (4) :

$$J_1(\omega) = \frac{kT}{2I} \frac{D(|\omega|)}{\omega^2} \quad (5)$$

Pour calculer  $J_2(\omega)$ , on pourra passer par l'intermédiaire de  $K_2(\tau)$ , fonction de corrélation de  $\theta^2 - \bar{\theta}^2$  ; on démontre que :

$$K_2(\tau) = 2 (K_1(\tau))^2 \quad (6)$$

(On sait que (6) est valable pour les fonctions aléatoires du type Laplace-Gauss, c'est-à-dire celles dont toutes les fonctionnelles linéaires ont des fonctions de distribution gaussienne ; or, c'est bien évidemment le cas des  $q_i$ , toute fonctionnelle linéaire des  $q_i$  en est une des  $\xi_r$ , et ces derniers, coordonnés d'oscillateurs harmoniques isolés, ont chacun une fonction de distribution gaussienne, fait bien connu).

**2. Cas d'une file.** — Nous n'introduirons que les couplages entre voisins immédiats, c'est-à-dire que :

$$A_{n,n} = A ; \quad A_{n,n \pm 1} = A \alpha$$

les autres éléments sont nuls. On vérifie sans peine que  $e^{im\theta}$  constitue un vecteur propre possible de  $A$ , et on tire de là les fréquences propres :

$$\omega^2 = \frac{A}{I} (1 + 2\alpha \cos \theta) \quad (7)$$

Pour avoir la répartition de ces fréquences, il suffit de savoir que  $\theta$  est uniformément réparti de 0 à  $2\pi$ .

Il faut que  $|\alpha| < 1/2$ . En effet le cas  $|\alpha| > 1/2$  est visiblement exclu, mais même le cas  $|\alpha| = 1/2$  (qui se présente lorsqu'on développe une théorie analogue pour les ondes de Debye) est également exclu ici, car il ne peut pas y avoir une combinaison linéaire des  $q_i$  susceptible de croître indéfiniment dans l'équilibre statistique.

Une conclusion importante est que, d'après (5) et (7) :

$$J_1(0) = 0.$$

Ceci se retrouvera évidemment pour les réseaux à 2 ou 3 dimensions. Pour trouver  $J_1(0)$  non nul, il faudrait introduire d'autres mécanismes, par exemple coupler nos librateurs avec les ondes de Debye, qui, elles, ont un spectre allant jusqu'à 0.

**CALCUL DE  $J_2(0)$ .** — En prenant comme paramètre  $\theta$ , on a, d'après (3) :

$$K_1(\tau) = \frac{kT}{I} \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} d\theta \frac{\cos \omega \tau}{\omega^2}$$

Nous ne pouvons effectuer cela qu'en faisant l'approximation  $|\alpha| \ll 1$  et alors :

$$\omega = \omega_0 (1 + \alpha \cos \theta), \quad \omega_0 = (A/I)^{1/2}$$

$$\begin{aligned} K_1(\tau) &= \frac{kT}{I} \frac{1}{2\pi \omega_0^2} \int_0^{2\pi} d\theta \cos [\omega_0 (1 + \alpha \cos \theta) \tau] \\ &= \frac{kT \cos \omega_0 \tau}{I} \frac{1}{2\pi \omega_0^2} \int_0^{2\pi} d\theta \cos (\omega_0 \alpha \tau \cos \theta) \\ &= \frac{kT}{I \omega_0^2} \cos \omega_0 \tau \cdot J_0(\omega_0 \alpha \tau) \end{aligned}$$

( $J_0$  est la fonction de Bessel d'ordre 0).

$$K_2(\tau) = 2 \left( \frac{kT}{I \omega_0^2} \right)^2 \cos^2 \omega_0 \tau \cdot J_0^2(\omega_0 \alpha \tau) \quad (8)$$

qui au loin se comporte comme  $1/\tau$ . Donc :

$$J_2(0) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} K_2(\tau) d\tau = \infty.$$

Le modèle de la file unidimensionnelle donne un  $T_1$  nul. Certes, si on calculait  $J_2(\omega_0)$ , on trouverait un résultat fini, mais trop élevé, pour  $1/T_1$  ; de plus,  $1/T_2$  fait intervenir en toute rigueur  $J_2(0)$ , autrement dit les raies quadrupolaires devraient être inobservables. En fait, cela prouve simplement qu'il faut faire intervenir les couplages négligés jusqu'ici, dont le rôle sera prépondérant. Notamment, les files qui interviennent dans les problèmes réels sont certainement couplées entre elles, il faut donc examiner le réseau à 2 ou 3 dimensions.

**3. Cas d'un réseau à deux dimensions.** — On repère chaque oscillateur par deux indices  $m$  et  $n$ . Les seuls éléments que nous donnerons à la matrice  $A$  seront :

$$A_{m,n;m,n} = A ; \quad A_{m,n;m \pm 1,n} = A \alpha ; \quad A_{m,n;m,n \pm 1} = A \beta.$$

On trouvera des vecteurs propres du type :  $e^{i(m\theta + n\chi)}$ , et les fréquences propres seront données par :

$$\omega^2 = \omega_0^2 (1 + 2\alpha \cos \theta + 2\beta \cos \chi) \quad (9)$$

On a la condition :  $|\alpha| + |\beta| < 1/2$ .



Pour obtenir le spectre de  $\omega$ , on notera que  $\vartheta$  et  $\chi$  sont distribués indépendamment et uniformément, chacun entre 0 et  $2\pi$ . Pour pousser les calculs il faudra encore supposer :  $\alpha, \beta \ll 1$ .

On tire de là :

$$\begin{aligned} J_2(0) &= \frac{2}{\pi} \int_0^\infty [K_1(\tau)]^2 d\tau \\ &= \frac{2}{\pi} \left( \frac{kT}{I\omega_0^2} \right)^2 \int_0^\infty d\tau \cos^2 \omega_0 \tau J_0^2(\omega_0 \alpha \tau) J_0^2(\omega_0 \beta \tau). \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} K_1(\tau) &= \frac{kT}{I} \frac{1}{4\pi^2 \omega_0^2} \int_0^{2\pi} d\vartheta \int_0^{2\pi} d\chi \cos \omega_0 (1 + \alpha \cos \vartheta + \beta \cos \chi) \tau \\ &= \frac{kT}{I} \frac{1}{4\pi^2 \omega_0^2} \int_0^{2\pi} d\vartheta \int_0^{2\pi} d\chi \cos \omega_0 \tau \cdot \cos(\omega_0 \alpha \tau \cos \vartheta) \cdot \cos(\omega_0 \beta \tau \cos \chi) \\ &= \frac{kT}{I\omega_0^2} \cos \omega_0 \tau \cdot J_0(\omega_0 \alpha \tau) \cdot J_0(\omega_0 \beta \tau). \end{aligned}$$

Ceci converge, parce que l'intégrand se comporte au loin comme  $1/\tau^2$  ; l'approximation concernant  $\alpha$  et  $\beta$  permet de remplacer  $\cos^2 \omega_0 \tau$  par  $1/2$  et d'écrire :

$$J_2(0) = \frac{1}{\pi} (kT/I\omega_0^2)^2 \int_0^\infty d\tau J_0^2(\omega_0 \alpha \tau) J_0^2(\omega_0 \beta \tau). \quad (10)$$

Introduisons la fonction :

$$I(\lambda) = \int_0^\infty dx J_0^2(x) J_0^2(\lambda x).$$

On peut donner à (10) la forme (10a) :

$$J_2(0) = (kT/I\omega_0^2)^2 (\pi \omega_0 \alpha)^{-1} I(\beta/\alpha) \quad (18a)$$

On a intérêt à supposer, ce qui est loisible,  $\alpha > \beta$  ; en effet, la fonction  $I(\lambda)$  ne varie guère, pour  $\lambda < 1$  ; on peut prendre  $I(\lambda) \sim 1,5$  pour  $1/20 < \lambda < 1$ ,  $2\omega_0\alpha$  est voisin de la largeur de la bande de fréquence, soit  $2\omega_1$ , et finalement :

$$J_2(0) \sim 0,5 (kT/I\omega_0^2)^2 / \omega_1. \quad (11)$$

#### 4) Calcul approché, dans le cas de bandes larges.

— Nous calculerons  $J_2(0)$  à partir de  $J_1(\omega)$  par :

$$J_2(0) = 2 \int_{-\infty}^{+\infty} |J_1(\omega)|^2 d\omega = 4 \int_0^\infty |J_1(\omega)|^2 d\omega \quad (12)$$

qu'on démontrera à l'aide de (6). Compte tenu de (5) :

$$J_2(0) = (kT/I)^2 \int d\omega (D(\omega)/\omega^2)^2.$$

Nous essaierons pour  $D(\omega)$  une forme  $D(\omega) = a + b\omega$ , nous ajusterons  $a$  et  $b$  pour que les moments d'ordre 0 et 2 aient les valeurs correctes, à savoir 1 et  $\omega_0^2$ . En effet :

$$\overline{\omega^2} = \frac{1}{4\pi^2} \int_0^{2\pi} d\vartheta \int_0^{2\pi} d\chi \omega_0^2 (1 + 2\alpha \cos \vartheta + 2\beta \cos \chi) = \omega_0^2$$

Tout calcul fait, en désignant par  $\omega'$  et  $\omega''$  les pulsations limites du spectre, on trouve que :

$$D(\omega) = 2\omega/(\omega''^2 - \omega'^2) \quad (\omega' < \omega < \omega'') \quad (13)$$

$$\begin{aligned} J_2(0) &= (kT/I)^2 \frac{4}{(\omega''^2 - \omega'^2)^2} \int_{\omega'}^{\omega''} d\omega \omega^2 \\ &= (kT/I)^2 \frac{4}{(\omega'' + \omega')^2 (\omega'' - \omega') \omega' \omega''} \quad (14) \end{aligned}$$

Pour un spectre étroit :  $\omega' + \omega'' = 2\omega_0$  ;  $\omega'\omega'' = \omega_0^2$  ;  $\omega'' - \omega' = 2\omega_1$ .

$$J_2(0) = 0,5 (kT/I)^2 \cdot 1/\omega_0^2 \omega_1. \quad (15)$$

(11) et (15) sont en bon accord, cela permet d'espérer que (14) est satisfaisant dans le cas général. (sauf, évidemment si le rapport  $\beta/\alpha$  avait des valeurs trop éloignées de 1).

**5) Théorie quantique.** — Il nous faut employer les fonctions de corrélations et densité spectrales quantiques [4].

La densité spectrale de la coordonnées  $\xi_r$  est nécessairement du type suivant, à cause des règles de sélection de l'oscillateur :

$$J^{(r)}(\omega) = A\delta(\omega - \omega_r) + B\delta(\omega + \omega_r),$$

avec :

$$A + B = \overline{\xi_r^2} ;$$

$$I\omega_r^2 \overline{\xi_r^2} = A' \overline{\xi_r^2} = \text{énergie moyenne} = \frac{\hbar\omega_r}{2} \coth(\beta\hbar\omega_r/2)$$

$$(\beta = 1/kT).$$

D'autre part :

$$J^{(r)}(-\omega) = J^{(r)}(\omega) e^{-\beta\hbar\omega}$$

d'où :

$$B = A e^{-\beta\hbar\omega_r},$$

ce qui permet d'évaluer  $A$  et  $B$  trouvés égaux à :

$$A \text{ ou } B = \frac{\hbar}{4I\omega_r} e^{\pm\beta\hbar\omega_r/2} / \text{sh}(\beta\hbar\omega_r/2)$$

Comme :

$$J_1(\omega) = \frac{1}{N} \sum_{ir} J^{(r)}(\omega) (S_{ir})^2 = \frac{1}{N} \sum_r J^{(r)}(\omega) \quad (16)$$

(On démontrerait (16) en transposant (2) dans le domaine quantique, et en passant aux transformées de Fourier),

$$J_1(\omega) = \frac{\hbar}{4I\omega} D(|\omega|) e^{\beta\hbar\omega/2} / \text{sh}(\beta\hbar\omega/2) \quad (17)$$

(valable pour  $\omega \geq 0$ ).

Pour en tirer  $J_2(0)$ , il faut faire attention à la non-parité des densités spectrales; et ne plus employer (12); la formule exacte, valable d'ailleurs pour les fonctions aléatoires du type de Laplace-Gauss est la suivante :

$$\begin{aligned} J_2(\omega) &= 2 \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega' J_1(\omega') J_1(\omega - \omega') \\ J_2(0) &= 4 \int_0^{\infty} d\omega J_1(\omega) J_1(-\omega) \\ &= 4 \int_0^{\infty} d\omega |J_1(\omega)|^2 e^{-\beta\hbar\omega} \\ &= (\hbar/2I)^2 \int_0^{\infty} d\omega \frac{(D(\omega))^2}{\omega^2 \text{sh}^2(\beta\hbar\omega/2)} \quad (18) \end{aligned}$$

Si le spectre peut être considéré comme étroit, on voit sur (18) que :

$$J_2(0) = \text{Cte.} / \text{sh}^2(\beta\hbar\omega_0/2) \quad (17)$$

la constante se déterminerait par la théorie classique, puisque, pour  $\beta\hbar\omega_0 \ll 1$  ;

$$J_2(0) = \text{Cte.} / 4 (kT)^2 / (\hbar\omega_0)^2 \quad (20)$$

Si cette approximation est justifiée, nous obtenons donc une loi en  $\text{sh}^2(\hbar\omega_0/2kT)$  pour le temps  $T_1$ , c'est-à-dire essentiellement, une loi en  $1/T^2$ , aux hautes températures, et une loi en  $\exp(\hbar\omega_0/kT)$ , aux basses températures.

**Calcul approché pour une bande large.** — Nous utiliserons l'approximation (13) pour  $D(\omega)$ , ce qui nous donne :

$$\begin{aligned} J_2(0) &= (\hbar/I)^2 (\omega''^2 - \omega'^2)^{-2} \int_{\omega'}^{\omega''} d\omega / \text{sh}^2(\beta\hbar\omega/2) \\ &= (\hbar/I)^2 (\omega''^2 - \omega'^2)^{-2} \frac{2}{\beta\hbar} \left( \coth \frac{\beta\hbar\omega'}{2} - \coth \frac{\beta\hbar\omega''}{2} \right) \\ &= \frac{2\hbar}{I^2 (\omega''^2 - \omega'^2)^2} \frac{\text{sh}(\beta\hbar(\omega'' - \omega')/2)}{\text{sh}(\beta\hbar\omega'/2) \text{sh}(\beta\hbar\omega''/2)} \quad (21) \end{aligned}$$

**Conclusion.** — Nous n'avons pas détaillé dans cet article le cas du réseau à 3 dimensions, il semble que les diverses relations rencontrées concernant le réseau à 2 dimensions doivent s'appliquer avec une bonne approximation. Si l'on connaissait tous les éléments de la matrice  $A$ , on serait ramené au calcul d'une fonction étendant  $I(\lambda)$  au problème à 3 dimensions ; si l'on ne connaît que les fréquences limites du spectre, il faut utiliser les mêmes formules approchées que pour le réseau à 2 dimensions.

#### Appendice I. — Étude de la fonction $I(\lambda)$ .

$$I(\lambda) = \int_0^{\infty} dx f(x) f(\lambda x) \quad (22)$$

avec :

$$f(x) = J_2(x)$$

On démontre facilement que la forme (22) entraîne les propriétés suivantes :

$$I(\lambda) = I(1/\lambda) \quad (23)$$

$$I'(1) = -\frac{1}{2} I(1)$$

L'intégration numérique fournit :  $I(1) = 0,901$  (à  $10^{-6}$ ).

**Comportement au loin.** — Pour  $\lambda \rightarrow \infty$ , on écrit :

$$I(\lambda) = \int_0^{a/\lambda} + \int_{a/\lambda}^a + \int_a^{\infty}$$

en choisissant  $a$  tel que :  $1 \ll a \ll \lambda$ . En profitant des propriétés asymptotiques de  $J_0$ , cela peut s'écrire :

$$\begin{aligned} I(\lambda) &= \frac{1}{\lambda} \int_0^a dx J_0^2(x) + \int_{a/\lambda}^a dx J_0^2(x) / \pi \lambda x + 1/\pi^2 \lambda a \\ I(\lambda) &= \int_0^a dx \left( J_0^2(x) - \frac{1 - J_0^2(x)}{\pi x} \right) + (\log \lambda) / \pi + 1/\pi^2 \lambda a \\ &= \int_0^{\infty} dx \left( J_0^2(x) - \frac{1 - J_0^2(x)}{\pi x} \right) + \frac{1}{\pi} \log \lambda \\ &= 0,888 + \frac{1}{\pi} \log \lambda = 0,888 + 0,733 \log_{10} \lambda \end{aligned}$$

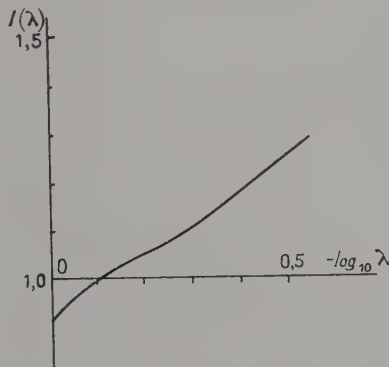


FIG. 1.

En fait cette formule donne de bonnes valeurs, même pour  $\lambda$  pas très grand. Ci-contre, le graphique de  $I$  en fonction de  $-\log \lambda$  ( $\lambda < 1$ ). On vérifie bien que  $I(\lambda)$  varie très lentement. (Par ex.  $I(1) = 0,901$  ;  $I(1/2) = 1,11$  ;  $I(1/3) = 1,24$ .)

#### Appendice II. — DÉMONSTRATION DE (6) DANS LE CAS QUANTIQUE :

Considérons d'abord un oscillateur harmonique, de pulsation propre  $\omega_0$  et de constante de force  $A$ , ayant les niveaux  $\hbar\omega_0(n + 1/2)$ . Rappelons que :

$$n = e^{-\frac{\alpha}{2}} / 2 \text{sh}^2 \frac{\alpha}{2} ; \quad n^2 = e^{-\alpha} \text{ch}(\alpha/2) / 2 \text{sh}^2 \frac{\alpha}{2} \quad (24)$$

$$(\alpha = \hbar\omega_0/kT).$$



Soient  $K_1(\tau)$  et  $K_2(\tau)$  les fonctions de corrélations de  $q$  et  $q^2$ . Le calcul du paragraphe 5 nous donne  $K_1$  :

$$k_1(\tau) = (\hbar\omega_0/4A) \left[ \exp\left(\frac{\alpha}{2} + i\omega_0\tau\right) + \exp\left(-\frac{\alpha}{2} - i\omega_0\tau\right) \right] \text{sh } \frac{\alpha}{2}$$

D'après les règles de sélection pour  $q^2$  on peut poser :

$$K_2(\tau) = a + d e^{2i\omega_0\tau} + c e^{-2i\omega_0\tau}$$

avec :

$$a + b + c = \overline{q^4} = 3 (\overline{q^2})^2 \quad (25)$$

cela parce que  $q$  a une fonction de distribution gaussienne,

$$b = c e^{-2\alpha} \quad (26)$$

On calcule  $a$  par sa définition :

$$a = \overline{(n|q^2|n)}^2 = (\hbar\omega_0/A)^2 \overline{(n+1/2)}^2$$

En utilisant (24), on trouve :

$$a = (\hbar\omega_0/2A)^2 (3 + \text{ch } \alpha)/2 \text{sh}^2(\alpha/2)$$

On calcule ensuite  $b$  et  $c$ , à l'aide de (25, 26), d'où :

$$K_2(\tau) = (\hbar\omega_0/2A)^2 (\text{ch } \alpha + 3 + e^{\alpha+2i\omega_0\tau} + e^{-\alpha-2i\omega_0\tau})/2 \text{sh}^2\left(\frac{\alpha}{2}\right)$$

On vérifie facilement que :

$$K_2(\tau) = 2 K_1(\tau)^2 + (k_1(0))^2 \quad (27)$$

On examine ensuite le cas d'une fonction linéaire de coordonnées d'oscillateurs, et on démontre simplement que (27) est encore valable. Or, (27) n'est autre que (6). L'absence du terme constant dans (6) provenant du fait que l'on y considère la fonction de corrélation de  $\theta^2 - \overline{\theta^2}$ , et non celle de  $\theta^2$ .

Manuscrit reçu le 7 novembre 1955.

## BIBLIOGRAPHIE

[1] BAYER (H.), *Z. Physik*, 1951, **130**, 227.

[2] ROUSSET (A.), LOCHET (R.), *J. Physique Rad.*, 1942, **3**, 146.

[3] AYANT (Y.), Thèse, *Ann. Physique*, 1955.

[4] AYANT (Y.), *J. Physique Rad.*, 1955, **16**, 411.

## REVUE DES LIVRES

BAUER (E.), **Champs de vecteurs et de tenseurs**. (1 vol., 17 × 26 cm, 204 pages, Masson, Paris, 1955.)

Ce livre est l'œuvre d'un physicien. La première partie comprend une étude des vecteurs et des tenseurs (40 pages), de leurs champs en général (27 pages), des champs newtoniens et laplaciens (27 pages), enfin des tenseurs dans les espaces à  $n$  dimensions (35 pages). Bien que cette étude soit faite avec toute la généralité qui convient, l'auteur, n'oubliant pas, comme Einstein, que « la géométrie est la plus ancienne et la plus parfaite des théories physiques », ne manque jamais d'indiquer comment ces concepts abstraits se rattachent, par leur origine et par leur emploi, à divers domaines de la physique : cinématique, élasticité, hydrodynamique, théorie de la chaleur, cristallographie, électricité, relativité.

L'ouvrage porte pour sous-titre « Introduction à l'électromagnétisme » et sa seconde partie (64 pages) est, en effet, consacrée à un examen concis, mais complet, des équations du champ électrique, du champ magnétique, de l'électromagnétisme, des équations de Maxwell-Lorentz et de leur invariance relativiste. La lecture en serait, certes, difficile à un débutant ; mais elle me paraît indispensable à ceux qui sont amenés à réfléchir sur l'enseignement de l'électromagnétisme. On sait qu'à propos du choix d'un système cohérent d'unités électriques pratiques, on a reconnu la nécessité d'apporter des changements importants au mode traditionnel d'exposition des lois de l'électricité. A ce mouvement d'idées, nous devons les fécondes discussions du *Bulletin de l'Union des Physiciens*, ainsi que les efforts de MM. Dubois, Durand, Jouguet dans la rédaction de leurs intéressants traités.

L'analyse approfondie que fait M. Bauer des fondements

de l'électromagnétisme et des conceptions de Maxwell, de Mie, de Sommerfeld, apporte une contribution précieuse à ces débats. Son souci de pénétrante clarté fait contraste avec la regrettable légèreté que mettent à l'examen de ces questions les auteurs de certains manuels récents d'enseignement supérieur.

J. P. MATHIEU.

SCHIFF (L. I.), **Mécanique quantique (Quantum mechanics)**. (1 vol., 15 × 22,5 cm, 417 pages, Mac-Graw Hill, Londres, 1955, 47 s.)

Nouvelle édition de cet ouvrage désormais classique. Quelques petites modifications. (Détermination des moments, sections efficaces et diffusion vers l'avant, théorème du viriel, principe variationnel pour la détermination des déphasages, théorie de la portée effective dans l'interaction neutron-proton, etc...) Dans l'ensemble, et notamment la théorie quantique des champs, l'ouvrage est inchangé.

J. WINTER.

BRUN (E. A.), **Introduction à l'étude de la couche limite**. (1 vol., 16 × 25 cm, 190 pages, Gauthier-Villars, Paris, 1955, 1 800 F.)

Étude théorique des phénomènes dynamiques et thermiques dans la couche limite. I) Généralités. II) Cas de la plaque plane dans le lit du vent. III) Cas d'un écoulement plan ou de révolution. IV) Couche limite de diffusion.

Cet ouvrage a la forme d'un traité destiné aux étudiants ; définitions précises, formules encadrées, etc... La discussion et l'analyse des phénomènes sont sommaires.

J. WINTER.

## SÉPARATION ISOTOPIQUE PAR PASSAGE DU COURANT DANS UN MÉTAL FONDU

Par PIERRE G. DE GENNES,

Centre d'Études Nucléaires du C. E. A., Saclay.

**Sommaire.** — L'analyse des chocs ions-électrons dans un métal fondu comprenant 2 isotopes montre que la section efficace de l'isotope léger est supérieure à celle de l'isotope lourd ; en présence du courant, le premier est donc entraîné par les électrons. Le calcul quantitatif de la ségrégation qui en résulte suppose connus le nombre d'électrons libres dans le métal liquide, la relation entre coefficients de diffusion et de viscosité, et la fréquence moyenne d'oscillation d'un ion, mais il ne fait pas intervenir la masse électronique. Le résultat calculé est environ 2 fois plus faible que ne l'indique la mesure de Nieff et Roth sur le gallium.

**1. Introduction.** — Un courant continu (intensité typique 100 ampères/mm<sup>2</sup>) passe pendant plusieurs jours dans un métal liquide comportant deux isotopes. L'isotope *léger* se concentre du côté *anodique*. L'effet a été observé en particulier sur le mercure [1], le gallium [2], etc...

Le signe de l'effet a conduit à envisager pour son interprétation les interactions ions-électrons [3]. Comme dans le traitement standard de la conductivité des métaux solides, nous analyserons ces interactions en termes de chocs ou de probabilités de transitions. Ceci nécessite quelques remarques.

On ne dispose que d'une description qualitative du mouvement « non perturbé » des électrons dans un métal liquide : le nuage électronique s'ajuste en  $\sim 10^{-17}$  secondes sur le mouvement des ions (périodes typiques  $10^{-13}$  secondes). Au potentiel de Hartree qui en résulte correspondent des niveaux instantanés d'électrons dans un champ de force non périodique (toutes les bandes ont une queue vers les hautes énergies). Au cours du mouvement des ions, ces niveaux sont déformés et les électrons d'énergie voisine du niveau de Fermi font des transitions entre eux ; ils peuvent ainsi céder de l'impulsion aux ions.

On décrira ici les ions comme des atomes d'Einstein, oscillant dans un cage de voisins, sans corrélation entre eux : aux températures envisagées, ce modèle est satisfaisant (4). L'approximation centrale consiste à admettre que le potentiel perturbateur est proportionnel à l'amplitude du déplacement de l'ion par rapport à sa position moyenne dans la cage. Cette approximation est parfaitement justifiée pour un métal solide ; il est difficile d'évaluer l'erreur qu'elle implique ici. Une autre approximation consistera à admettre l'existence d'un temps moyen de parcours des électrons bien défini. Elle peut introduire une erreur numérique notable.

## 2. Mouvement d'entraînement des ions. —

**1. ÉQUATION DE MOUVEMENT.** — Soit un métal à deux isotopes, 1 et 2 et posons :

$p_i$  : impulsion moyenne (d'entraînement) de l'espèce  $i$  dans le système du centre de masse du liquide.

( $p_i$  est déterminé par une moyenne sur des temps  $\sim 10^{-13}$  sec.)

$E$  : champ électrique.

$e$  : charge élémentaire.

$Z$  : nombre de charges par ion

$$\frac{dp_i}{dt} = -\frac{1}{\tau n i} p_i + F + ZeE - \varnothing_i \quad (\text{II}, 1)$$

$\frac{1}{\tau n i}$  définit la viscosité du métal pour l'isotope  $i$ .

$F$  désigne un gradient de pression (moyenne sur des temps  $\gg 10^{-13}$  sec.)

$\varnothing_i$  une force moyenne due aux chocs électroniques (pendant une période d'oscillation il y a environ cent chocs électroniques : moyenne bien définie).

En régime stationnaire :

$$\frac{dp_i}{dt} = 0. \quad (\text{II}, 2)$$

**2) CALCUL DES FORCES  $\varnothing_i$ .** — On peut admettre que la diffusion des électrons par un ion est isotrope. En effet :

a) la longueur d'action effective du potentiel coulombien de l'ion est  $\sim 0,5 \text{ \AA}$  pour le gallium ; on peut considérer que le rayon d'action n'excède guère le rayon ionique  $0,6 \text{ \AA}$ , or la longueur d'onde moyenne des électrons est  $\sim 3 \text{ \AA}$  ;

b) la statistique tend à orienter l'impulsion finale de l'électron en direction opposée au courant moyen d'électrons, ce qui augmente l'impulsion moyenne cédée. Cet effet est très faible de l'ordre de  $\frac{eE\lambda}{KT}$  ou  $\lambda$  est le libre parcours moyen  $\sim 10$  à  $30 \text{ \AA}$ .

Soit  $\tau_e$  le temps moyen entre deux chocs d'un électrons avec les ions. L'impulsion moyenne trans-



férée à un ion par choc est en valeur absolue :

$$eE\tau_e.$$

Le nombre de chocs par seconde sur l'espèce  $i$  sera désigné par  $1/\tau_i$ .

$$\varnothing_1 = \frac{eE\tau_e}{\tau_1} \quad (\text{II, 3})$$

En comptant tous les chocs survenus en une seconde on trouve que :

$$\frac{Z}{\tau_e} = \frac{\alpha_1}{\tau_1} + \frac{\alpha_2}{\tau_2} \quad (\text{II, 4})$$

ou  $\alpha_1$  et  $\alpha_2$  désignent les pourcentages des deux isotopes  $\alpha_1 + \alpha_2 = 1$  posant

$$\frac{Z}{\tau_e} = \frac{1}{\tau} \quad (\text{II, 5})$$

$$\varnothing_1 = ZeE \frac{\tau}{\tau_1} \quad (\text{II, 6})$$

on vérifie que

$$\alpha_1 \varnothing_1 + \alpha_2 \varnothing_2 = ZeE \quad (\text{II, 7})$$

(toute l'impulsion électrique acquise par les électrons est cédée aux ions).

3) COURANT DE SÉGRÉGATION. — En reportant II,6 dans II,2 on a pour le flux matière, défini par :

$$P = (\alpha_1 P_1 + \alpha_2 P_2) N \quad (\text{II, 8})$$

$N$  : densité d'ions

$$\frac{P}{N} = F(\tau_{n1}\alpha_1 + \tau_{n2}\alpha_2)$$

$$+ ZeE \left[ \tau_{n1}\alpha_1 \frac{\tau_1 - \tau}{\tau_1} + \tau_{n2}\alpha_2 \frac{\tau_2 - \tau}{\tau_2} \right]$$

en vertu de (II,4) les deux termes qui figurent dans le crochet sont de signes opposés ; nous montrerons qu'ils sont du premier ordre en  $\frac{\Delta M}{M}$ , variation relative de masse entre les deux isotopes. D'autre part  $\tau_{n1}$  et  $\tau_{n2}$  diffèrent aussi de termes du premier ordre en  $\frac{\Delta M}{M}$ .

En négligeant les termes du deuxième ordre et en posant :

$$\tau_n = \alpha_1 \tau_{n1} + \alpha_2 \tau_{n2} \quad (\text{II, 10})$$

$$\frac{P}{N} \sim F\tau_n + ZeE\tau_n \left[ \frac{\tau_1 - \tau}{\tau_1} + \frac{\tau_2 - \tau}{\tau_2} \alpha_1 \right]$$

$$F\tau_n.$$

On écrira alors que le flux matière est nul

$$\begin{aligned} P &= 0 \\ F &= 0 \end{aligned} \quad (\text{II, 13})$$

$$p_1 = ZeE \frac{\tau_1 - \tau}{\tau} \times \tau \quad (\text{II, 14})$$

le facteur  $Ze \frac{\tau_1 - \tau}{\tau_1}$  est une charge effective. L'isotope qui a le plus petit  $\tau_1$  (nombreux chocs avec les électrons) a une charge effective négative. L'autre isotope a une charge positive en vertu de (II, 4).

Définissons la vitesse de ségrégation par :

$$U = \frac{1}{M} (p_1 - p_2). \quad (\text{II, 15})$$

$M$  : masse moyenne des 2 types d'ions.

En négligeant toujours les termes en  $\left(\frac{\Delta M}{M}\right)^2$

$$U = \frac{ZeE}{M} \tau_n \tau \left( \frac{\tau_2 - \tau_1}{\tau_1 \tau_2} \right). \quad (\text{II, 15})$$

4) CALCUL DES PROBABILITÉS DE TRANSITION. —

L'ion oscille dans sa cage avec une fréquence  $\omega$  : le nombre de quanta d'oscillation est  $n$ . Il reçoit un électron d'impulsion  $k$  et émet un électron d'impulsion  $k'$ . Le déplacement de l'ion est  $\vec{U}$ , le potentiel perturbateur au point  $\vec{r}$   $\vec{W}(\vec{r}) \vec{U}$  par hypothèse.

L'élément de matrice pour l'absorption d'un phonon est :

$$\int d\vec{r} d\vec{u} \Psi_k^\times(r) \Psi_{k'}(r) W(\vec{r}) \vec{U} \Phi_n^\times(\vec{U}) \Phi_{n-1}(\vec{U}) \quad (\text{II, 18})$$

ou les  $\Psi$  sont les fonctions électroniques non perturbées, supposées indépendantes de  $\vec{U}$ , les  $\Phi_n$  sont le produit de 3 fonctions d'oscillateur harmonique.

L'élément de matrice se subdivise en trois termes de la forme :

$$\int d\vec{r} \Psi_k^\times \Psi_{k'} W(r) \left( \frac{\hbar'}{M\bar{K}} \right)^{1/4} \left( \frac{n}{2} \right)^{1/2}. \quad (\text{II, 19})$$

$\bar{K}$  : constante de force  $\bar{K} = M\omega^2$ .

$\bar{K}$  : indépendant de la masse de l'isotope.

On peut le résumer sous la forme :

$$A_{kk'} \times \left( \frac{n\hbar\omega}{2\bar{K}} \right)^{1/2} \quad (\text{II, 20})$$

ou  $A_{KK'}$  ne dépend que des paramètres électroniques.

De la même façon, l'élément de matrice pour l'émission est de la forme :

$$A_{kk'} \left[ \frac{(n+1)\hbar\omega}{2\bar{K}} \right]^{1/2}$$

La probabilité totale de transition est :

$$\frac{1}{\tau_1} = \frac{2}{\hbar} \sum_{KK'} \frac{\hbar\omega_1}{\bar{K}} |A_{kk'}|^2 n_k (1 - n_{k'}) [n\Omega_- + (n+1)\Omega_+] \quad (\text{II, 21})$$

où  $n_k$ ,  $n_{k'}$  sont les nombres d'occupation électroniques

$$\Omega = \frac{\sin(E_k - E_{k'} \pm \hbar \omega_i) t / \hbar}{E_k - E_{k'} \pm \hbar \omega_i}.$$

Les  $\Omega$  ne peuvent être ici remplacés par  $\delta(E_k - E_{k'} \pm \hbar \omega_i)$  car le temps  $t$  est inférieur à  $\tau_e \simeq 3.10^{-13}$  secondes ;  $\left(\frac{\hbar}{\tau_e} \sim 30 kT\right)$  on peut admettre au contraire que les  $\Omega$  sont égales dans le domaine d'énergies qui nous intéresse (et égales en moyenne à  $\frac{\tau_e}{2\hbar}$ ).

Dans ces conditions :

$$\frac{1}{\tau_i} = \text{cte} \times \left(n + \frac{1}{2}\right) \hbar \omega_i \quad (\text{II, 22})$$

$$\frac{1}{\tau_i} \sim \frac{\hbar \omega_i}{e \hbar \omega_i / KT} + \frac{1}{2} \hbar \omega_i$$

$$= KT + \frac{1}{12} \frac{(\hbar \omega_i)^2}{(KT)} + \dots \text{ pour } KT \gg \hbar \omega$$

(ce qui est bien vérifié ici).

D'où la variation relative de  $\frac{1}{\tau_i}$  entre les deux isotopes.

$$\frac{\Delta\left(\frac{1}{\tau}\right)}{\frac{1}{\tau}} = \frac{\Delta \omega}{\omega} \frac{1}{6} \left(\frac{\hbar \omega}{KT}\right)^2 = \frac{1}{12} \frac{\Delta M}{M} \left(\frac{\hbar \omega}{KT}\right)^2. \quad (\text{II, 23})$$

Le sens physique de ce résultat est le suivant : l'isotope léger est un peu plus « délocalisé » que l'isotope lourd (ou, si l'on veut, son oscillation du point 0 est supérieure) : son amplitude de vibration étant plus grande, il perturbe plus le mouvement des électrons, subit plus de chocs (et est entraîné par eux).

Dans la suite nous poserons :

$$(\hbar \omega)^2 = K^2 \Theta^2. \quad (\text{II, 24})$$

5) CALCUL DE  $\tau_n$ . — Si l'on admet la même énergie d'activation pour les processus de diffusion et de viscosité, on a la relation (5)

$$\tau_n = C \frac{MD}{KT} \quad (\text{II, 25})$$

ou  $D$  est le coefficient de self diffusion,  $C$  un facteur numérique de l'ordre de grandeur de 1, pour le gallium à 400° K, on constate que  $C = 1$  est une bonne approximation : on obtient en effet pour  $\tau_n$  des valeurs comparables ( $\tau_n \simeq 6.10^{-14}$ ), en le déduisant de la formule précédente avec  $C = 1$ , ou de la formule :

$$\tau_n = \frac{M}{6\pi\eta a}$$

avec  $\eta = 2.10^{-2}$  poises

$a \sim$  rayon ionique  $0,6 \cdot 10^{-8}$  cm.

D'où la formule finale, en utilisant (II, 17), (II, 23) et (II, 25).

$$\frac{U}{D} = \frac{ZeE}{12 KT} \times C \frac{\Theta^2}{T^2} \frac{\Delta M}{M}. \quad (\text{II, 26})$$

6) ÉTUDE DU RÉGIME DE DIFFUSION. — Soient  $\alpha_1 + \varepsilon$ ,  $\alpha_2 - \varepsilon$  les pourcentages isotopiques.

Les variations  $\varepsilon$  sont petites ( $\varepsilon < \frac{1}{20}$  dans l'expérience citée plus loin sur le gallium).

Les courants sont :

$$\begin{aligned} j_1 &= -D_1 \frac{\partial \varepsilon}{\partial x} + (\alpha_1 + \varepsilon) \frac{P_1}{M_1} \\ j_2 &= +D_2 \frac{\partial \varepsilon}{\partial x} + (\alpha_2 - \varepsilon) \frac{P_2}{M_2} \end{aligned} \quad (\text{II, 27})$$

on doit négliger les termes en  $\varepsilon \frac{\Delta M}{M}$  posant

$$\frac{P_1}{M} = V_1$$

$$j_1 \simeq -D \frac{\partial \varepsilon}{\partial x} + \alpha_1 V_1$$

$$j_2 \simeq D \frac{\partial \varepsilon}{\partial x} + \alpha_2 V_2 \quad (\text{II, 28})$$

$$j_1 + j_2 \simeq 0$$

la conservation des particules donne

$$\text{div } j_1 + \frac{\partial \varepsilon}{\partial t} = 0 \quad (\text{II, 29})$$

$$-D \frac{\partial^2 \varepsilon}{\partial x^2} + \frac{\partial \varepsilon}{\partial t} = 0 \quad (\text{II, 30})$$

avec pour conditions aux limites (longueur du capillaire :  $2l$ )

$$\begin{aligned} \left(\frac{\partial \varepsilon}{\partial x}\right)_{x=\pm l} &= \frac{\alpha_1 V_1}{D} \\ [\varepsilon(x)]_{t=0} &= 0. \end{aligned} \quad (\text{II, 31})$$

La solution est

$$\varepsilon = \frac{\alpha_1 V_1 x}{D} - \sum_{n>0} \frac{16 \alpha_1 V_1 l}{n^3 D} \frac{1}{(2n+1)^2} \frac{\sin(2n+1)\pi x}{2l} e^{-t/\theta_n} \quad (\text{II, 32})$$

$$\theta_n = \frac{1}{(2n+1)^2} \frac{(2l)^2}{\pi^2 D}. \quad (\text{II, 33})$$

a) à l'équilibre

$$\frac{\partial \varepsilon}{\partial x} = \alpha_1 \alpha_2 \frac{U}{D}$$

en posant

$$K_1 = \frac{\alpha_1 - \varepsilon}{\alpha_2 + \varepsilon}$$

$$\frac{1}{K_1} \frac{\partial K_1}{\partial x} = \frac{U}{D}. \quad (\text{II, 35})$$



b) on peut déduire une valeur approchée  $D$  de l'approche vers l'équilibre ; pour une expérience suffisamment longue, seul le premier terme de  $\Sigma_n$  dans (II, 32) intervient :

$$\varepsilon(l, t) = \alpha_1 \alpha_2 \frac{U l}{D} \left( 1 - \frac{16}{\pi^3} e^{-\pi^2 \theta_1} \right) \quad (\text{II, 36})$$

on connaît  $\alpha_1 \alpha_2 \frac{U}{D}$  par la pente de la courbe  $\varepsilon(x)$  aux points  $\pm 1$ , même si l'équilibre n'est pas atteint connaissant  $\varepsilon(l)$  on peut donc déduire  $\theta_1$  d'où  $D$ .

**3. Application numérique au gallium et conclusions.** — En utilisant les données numériques de Nieff et Roth [2] on trouve très approximativement

$$[D = 3.10^{-5} \text{ cm}^2/\text{s}.$$

On admet :

a) une température du métal de 400 °K environ (déduite de la conductivité thermique du capillaire) ;

b) une température  $\Theta$  d'environ  $T/3$  (la température d'Einstein du gallium solide est d'environ 100 °K, on est conduit à penser que  $\theta$  est plus élevé dans le métal liquide plus compact) ;

c) un nombre d'électrons porteurs du courant  $Z = 3$  (en fait, compris entre 1 et 3, mais certainement plus élevé pour le liquide que pour le solide).

On trouve  $U/D \sim \frac{F}{200} \text{ cm}^{-1}$  pour l'expérience citée, alors que le résultat expérimental est environ  $\frac{1}{80} \text{ cm}^{-1}$ .

L'origine de ce désaccord numérique est liée :

a) au choix de la forme du potentiel perturbateur ;

b) à l'usage d'un temps de libre parcours électronique ;

c) au caractère incertain de la relation entre diffusion et viscosité ;

d) au caractère anharmonique des vibrations.

La variation thermique de  $\frac{U}{D}$  ne peut être prédite

par (II, 26) sans connaissance plus détaillée des variations de  $Z$  et  $C$ . On peut penser que  $Z$  augmente avec la température (dans l'évaluation numérique nous avons admis  $Z = Z_{\text{max}} = 3$ ). La variation de  $C$  dépend de la différence des énergies d'activation de diffusion et de viscosité, et peut être rapide, de signe quelconque.

La comparaison de l'effet entre les différents métaux conduit à envisager le facteur  $Z \frac{\Theta^2}{T_F^3}$  ou  $T_F$  = température de fusion.

Ce facteur est particulièrement élevé dans les groupes des alcalins, du gallium, du zinc. (Ici encore, une évaluation de  $Z$  à l'état liquide est nécessaire pour une comparaison précise.)

On peut se demander enfin si l'effet est observable en dessous de la fusion. Au premier abord, (II, 25) restant valable, la formule (II, 26) paraît applicable. Cette conclusion est incorrecte. En effet, notre description en atomes d'Einstein perd beaucoup de sa validité, l'électron n'échange pas son impulsion avec un ion, mais avec un groupe d'ions voisins, et l'entraînement sélectif devient beaucoup plus faible.

L'existence d'un effet inverse (apparition d'une différence de potentiel en présence d'un gradient de concentration) a été suggérée par M. Yvon et envisagée indépendamment par M. Nieff. Il peut être calculé par la relation d'Onsager et paraît trop faible pour être mesurable.

Je tiens à remercier M. A. Herpin qui m'a suggéré ce problème, ainsi que le Pr E. Bauer avec qui nous avons longuement discuté à ce sujet. Je remercie également M. P. Aigrain et tout particulièrement MM. Nieff et Goldmann qui m'ont fourni les résultats expérimentaux indispensables.

Manuscrit reçu le 1<sup>er</sup> février 1956.

#### BIBLIOGRAPHIE

- [1] HAEFFNER, *Nature*, 1953, **172**, 775.  
 [2] NIEFF et ROTH, *C. R. Acad. Sc.*, 5 juillet 1954.  
 [3] KLEMM, *Naturforsch.*, 1954, **9 a**, 1031.

- [4] MOTT et JONES, *Theory of metals and alloys*, Oxford.  
 [5] HIRSCHFELDER, CURTISS, BIRD, *Molecular theory of gases and liquids*, 625.

MILLIGRAMME Ra-ÉQUIVALENT DE PLUSIEURS RADIOÉLÉMENTS ÉMETTEURS  $\gamma$ Par M<sup>me</sup> S. VUCCINO et J. TOBAILEM,

Institut du Radium, Laboratoire Curie.

**Sommaire.** — On a déterminé les milligrammes Ra-équivalent des radioéléments émetteurs  $\gamma$  suivants :  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{46}\text{Sc}$ ,  $^{24}\text{Na}$ ,  $^{64}\text{Cu}$ , pour deux chambres d'ionisation. Les sources des radioéléments étudiés ont été mesurées aux deux chambres par comparaison avec un étalon de radium. Leur intensité absolue a été déterminée par deux méthodes : mesure absolue directe à la chambre d'ionisation de P. Savel, comparaison avec des sources plus faibles étalonnées aux compteurs (méthode de coïncidences). On a tracé, à partir des résultats obtenus, la courbe de l'efficacité des chambres d'ionisation en fonction de l'énergie des rayonnements  $\gamma$  émis.

**I. Introduction.** — Parmi le grand nombre de radioéléments artificiels connus, certains sont utilisés si fréquemment qu'il est nécessaire dans les laboratoires de radioactivité d'avoir à sa disposition des étalons de ces radioéléments. Mais, outre la difficulté des mesures absolues, la période radioactive de beaucoup de ces radioéléments est trop courte pour que l'on puisse conserver pratiquement des étalons. Dans le cas des radioéléments émetteurs de rayonnements  $\gamma$ , il est préférable, toutes les fois que cela est possible, de déterminer une équivalence avec le radium : on compare les courants produits, dans une chambre d'ionisation de référence, par un étalon de radium et une source étalonnée du radioélément. Ce travail fait une fois pour toutes pour un appareil déterminé, la mesure absolue toujours délicate est alors remplacée par une simple comparaison avec un étalon de radium.

Nous avons déterminé le « milligramme Ra-équivalent » de plusieurs radioéléments émetteurs  $\gamma$  dans le cas de deux chambres d'ionisation : d'une part la grande chambre d'ionisation (grand condensateur) utilisée au Service des Mesures de l'Institut du Radium [1], d'autre part la chambre d'ionisation de Sebaoun [2] également de grandes dimensions (dans la suite nous la désignerons chambre S). Dans les deux cas les rayonnements sont filtrés par 1 cm de plomb. Ces mesures nous ont permis en outre de calculer l'efficacité des chambres en fonction de l'énergie des rayonnements  $\gamma$  émis par les radioéléments étudiés. La connaissance de la courbe efficacité-énergie constitue un étalonnage de la chambre d'ionisation ; une simple mesure permet alors de connaître en valeur absolue, l'activité de tout radioélément émetteur  $\gamma$  dont on connaît le schéma de désintégration et l'énergie des rayonnements  $\gamma$  émis.

**II. Mesures absolues.** — Pour l'étalonnage des sources radioactives deux méthodes ont été utilisées : mesures à la chambre d'ionisation à rayons  $\gamma$  de P. Savel [3], et méthode des coïnci-

dences ; nous avons pu ainsi comparer les résultats obtenus par ces deux méthodes différentes d'étalonnage.

**a) MESURES À LA CHAMBRE D'IONISATION DE P. SAVEL.** — L'appareillage se compose principalement d'une chambre d'ionisation remplie d'argon (10 kg/cm<sup>2</sup>) ; l'électrode collectrice est reliée à la grille d'une lampe électromètre ; le dispositif électrométrique est à compensation automatique des variations du courant de chauffage : les rayons  $\gamma$  émis par la source radioactive sont canalisés par plusieurs diaphragmes en plomb, l'angle solide utile étant de  $\frac{4\pi}{1905}$  stéradians. Pour mesurer le courant d'ionisation on utilise la méthode de compensation de Townsend :

$$i = \frac{CV}{300t} \text{ ues} \quad C = 1,35 \pm 0,02 \text{ ues} ; \quad V \text{ en volts, } t \text{ en sec.}$$

Le courant  $i$  est dû à l'ionisation par les électrons Compton, les photoélectrons et les électrons de matérialisation. Il est donné par :

$$i = Nq \frac{\Omega}{4\pi} h\nu l e^{-(a+\mu\delta)} (\tau_A + \sigma_A + \chi_A) n \frac{e}{\epsilon} \cdot K$$

$N$  = nombre de désintégrations par seconde dans l'angle  $4\pi$ ,

$q$  = nombre de photons d'énergie  $h\nu$  émis par désintégration,

$\Omega$  = angle solide utile,

$l$  = longueur de la chambre,

$a + \mu\delta$  = coefficients d'absorption pour les écrans,

$\tau_A, \sigma_A, \chi_A$  = coefficients d'absorption photoélectrique, Compton et de matérialisation par atome,

$n$  = nombre d'atomes du gaz par cm<sup>3</sup>,

$\epsilon$  = énergie nécessaire pour produire une paire d'ions,

$K$  = efficacité de la chambre pour l'énergie  $h\nu$



L'efficacité  $K$  de la chambre en fonction de l'énergie des rayons  $\gamma$  a été déterminée par P. Savel avec une précision de quelques pour cent. Nous avons calculé les coefficients  $\tau_A$  par les formules de Sauter et Hulme,  $\sigma_A$  par les formules de Klein et Nishina et  $\chi_A$  par celles de Bethe et Heitler [5]. La mesure de  $i$  permet alors de connaître le nombre  $N$  de désintégrations par seconde.

b) LA MÉTHODE DES COÏNCIDENCES. — Nous avons également utilisé la méthode des coïncidences avec compteurs G. M. et photomultiplicateurs. L'appareillage expérimental et la méthode ont été décrits en détail dans des publications antérieures [6, 7]. On a pu obtenir par cette méthode des précisions de l'ordre de quelques pour cent.

Nous avons ainsi préparé des étalons des radioéléments suivants :  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{46}\text{Sc}$ ,  $^{24}\text{Na}$ ,  $^{64}\text{Cu}$ , les énergies des rayonnements  $\gamma$  émis vont de 0,51 à 2,76 MeV.

III. Les chambres d'ionisation. — Le grand condensateur du laboratoire Curie [1] permet la

comparaison avec une bonne précision de deux sources radioactives au moyen de leurs rayonnements  $\gamma$ ; les rayonnements sont filtrés par 1 cm de plomb. L'influence d'une différence dans la forme géométrique des sources est pratiquement négligeable dans le cas de sources plates; par contre, il peut parfois être nécessaire de faire une correction dans le cas de déplacements dans le sens vertical (de l'ordre de 1 pour cent pour 3 mm). Cette chambre d'ionisation n'est pas étanche, le courant d'ionisation est sensible à une variation de la pression atmosphérique, mais cela ne présente pas beaucoup d'inconvénient car les mesures sont faites par comparaison avec un étalon de radium.

La chambre S [2] a été construite pour la comparaison précise de sources de radium plus faibles. Cette chambre, de forme géométrique voisine de celle du grand condensateur, est plus sensible. On a comparé ci-dessous les principales caractéristiques des deux chambres et leur dispositif électrométrique.

	GRAND CONDENSATEUR	CHAMBRE S
Volume des chambres .....	11,7 l	18,9 l
Gaz de remplissage .....	Air 1 kg/cm <sup>2</sup> (non étanche)	Argon 1 kg/cm <sup>2</sup> (étanche)
Mouvement propre .....	10 <sup>-3</sup> ues	3,7.10 <sup>-4</sup> ues
Sensibilité .....	0,034 ues/mg Ra	0,065 ues/mg Ra
Dispositif électrométrique...	Électromètre à quadrants	Lampe électromètre
Sensibilité à la tension .....	800 mm/volt	2 000 mm/volt
Méthode de mesure .....	Quartz piézoélectrique	Méthode de Townsend

IV. Résultats expérimentaux. — a) MILLIGRAMME Ra-ÉQUIVALENT. — Le milligramme Ra équivalent d'un radionucléide pour une chambre d'ionisation est la quantité de ce radionucléide, exprimée en millicuries, qui produit dans cette chambre le même courant d'ionisation que 1 milligramme de radium.

On a :

$$M = \frac{A}{I} \quad M = \text{milligramme Ra équivalent.}$$

$A$  = intensité absolue du radioélément en mC.

$I$  = intensité équivalente du radium à la chambre d'ionisation.

Les valeurs obtenues sont groupées dans le tableau suivant :

	M	M
RADIOÉLÉMENT	GRAND CONDENSATEUR	CHAMBRE S
$^{60}\text{Co}$	0,57 ± 0,02	0,57 ± 0,02
$^{137}\text{Cs}$	6,4 ± 0,4	6,1 ± 0,4
$^{24}\text{Na}$	0,30 ± 0,02	0,30 ± 0,02
$^{46}\text{Sc}$	0,77 ± 0,04	0,76 ± 0,04
$^{64}\text{Cu}$	3,6 ± 0,3 (1)	3,8 ± 0,2 (1)

Les résultats sont en accord pour les deux

(1) La valeur absolue de l'intensité du  $^{64}\text{Cu}$  tient compte seulement du nombre de désintégrations  $\beta^+$ .

chambres d'ionisation, dans la limite des erreurs expérimentales.

b) EFFICACITÉ DES CHAMBRES D'IONISATION. — Soit un radioélément émetteur de rayons  $\gamma$  mono-énergétiques d'énergie  $E$ . On peut définir l'efficacité  $\rho$  de la chambre d'ionisation pour l'énergie  $E$  comme le rapport du courant d'ionisation produit au nombre  $N$  de rayons  $\gamma$  mis par seconde :

$$\rho = \frac{i}{N}$$

Si le radioélément émet plusieurs rayonnements  $\gamma$  d'énergie  $E_1, E_2 \dots E_p$ ;  $N_1, N_2 \dots N_p$  étant le nombre de ces rayons  $\gamma$  émis par seconde, on a :

$$i = \sum \rho_p N_p$$

Si l'on prend comme unité pour  $i$ , le courant d'ionisation produit par  $\frac{1}{3,7 \cdot 10^7}$  mg. de radium, on obtient :

$$i = \frac{N}{M} = \sum \rho_p N_p$$

$N$  étant le nombre de désintégrations par seconde du radioélément.

On a indiqué dans le tableau ci-dessous les efficacités des 2 chambres d'ionisation calculées pour

les énergies des  $\gamma$  émis par les radioéléments étudiés. Dans les cas du  $^{60}\text{Co}$  et du  $^{46}\text{Sc}$ , radioéléments émetteurs de 2 rayons  $\gamma$  d'énergie voisine, on a considéré dans le calcul, l'énergie moyenne.

ÉNERGIE DES $\gamma$	GRAND CONDENSATEUR	CHAMBRE S
0,511	$0,13 \pm 0,01$	$0,12 \pm 0,01$
0,661	$0,17 \pm 0,014$	$0,18 \pm 0,014$
1	$0,65 \pm 0,04$	$0,66 \pm 0,04$
1,25	$0,88 \pm 0,03$	$0,88 \pm 0,30$
2,76	$2,30 \pm 0,15$	$2,30 \pm 0,15$

A partir de ces 5 valeurs de  $\rho$ , on a essayé de tracer la courbe  $\rho = f(E)$ . La figure montre la courbe obtenue pour la chambre S.

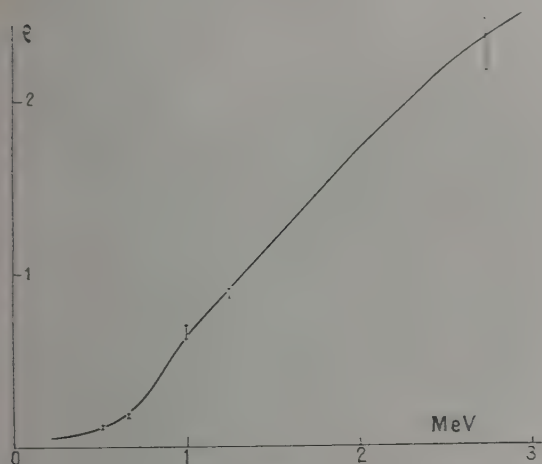


FIG. 1.

Un contrôle consiste à vérifier que le milligramme Ra équivalent calculé pour le Radium à partir de cette courbe est bien égal à 1. Pour cela on a tenu compte des proportions relatives des rayons  $\gamma$  de différentes énergies dans le rayonnement du radium. On a obtenu ainsi  $M_{\text{radium}} = 0,986$ . L'accord est réalisé à 1 pour cent près.

C'est toujours en tenant compte des rayons  $\gamma$  du Ra que la courbe n'a pas été tracée comme une droite entre les points correspondants à 1,26 et 2,76 MeV ; on trouve dans ce cas pour le milligramme Ra équivalent, une moins bonne valeur.

**V. Conclusion.** — Les mesures précédentes nous ont ainsi permis d'établir une équivalence entre les rayonnements  $\gamma$ , du radium et de cinq radioéléments. On pourra, à l'avenir, évaluer l'intensité absolue d'une source d'un des radioéléments étudiés, en faisant une simple comparaison avec un étalon de radium. Remarquons que les valeurs obtenues pour les deux chambres d'ionisation considérées sont approximativement les mêmes. Les précisions sont de l'ordre de quelques pour cent, l'erreur la plus grande provenant des mesures absolues. Signalons qu'une chambre d'ionisation semblable à celle de P. Savel, mais plus sensible est actuellement en cours de construction au Laboratoire Curie ; nous espérons obtenir avec cette chambre des précisions de l'ordre de 1 pour cent.

Ce travail a été effectué sous la direction de M<sup>me</sup> Irène Joliot-Curie ; nous conservons d'elle un ineffaçable souvenir et lui vouons une profonde gratitude.

Manuscrit reçu le 23 décembre 1955.

#### BIBLIOGRAPHIE

- [1] M<sup>me</sup> CURIE (P.), *J. Physique Rad.*, 1912, 2, 795.
- [1 bis] M<sup>me</sup> CURIE (P.), *J. Physique Rad.*, 1933, 4, 459.
- [1 ter] M<sup>me</sup> CURIE (P.), *J. Physique Rad.*, 1954, 15, 790.
- [2] SEBAOUN (W.), *Thèse*, Paris, 1955.
- [3] SAVEL (P.), *Cahiers de Physique*, mars 1944.
- [4] DAVISSON (C. M.) et EVANS (R. D.), *Rev. Mod. Phys.*, 1952, 24, 79.
- [5] VUCCINO (S.), *J. Physique Rad.*, 1955, 16, 462.
- [6] VUCCINO (S.), *J. Physique Rad.*, 1956, 17, 873.



## SUR LES CORRESPONDANCES ENTRE BIVECTEURS ET SPINEURS SIMPLES ET LA DESCRIPTION CORPUSCULAIRE DES ONDES ÉLECTROMAGNÉTIQUES

Par G. BODIOU,

Faculté des Sciences de Marseille.

**Sommaire.** — Des conditions de réalité et de réciprocité permettent de définir une correspondance invariante entre un bivecteur isotrope réel et un couple de spineurs simples particuliers. Une telle correspondance pourrait traduire une équivalence objective entre un photon-onde plane et un couple de corpuscules de Dirac de masse nulle, de densités de vecteur-courant égales, de densités de moments électromagnétiques opposés, de densité de spin nulle, dont chacun est confondu avec une « lacune associée ».

Nous construisons une certaine description spinorielle du champ électromagnétique. Toute description de ce type est fondée sur une correspondance déterminée entre bivecteurs et spineurs. Cette correspondance peut être [9] une équivalence tensorielle ordinaire entre un bivecteur et un spineur du second rang ; elle se réalise par une transformation linéaire fixe de l'un de ces tenseurs dans l'autre, qui lui est équivalent ; la transcription spinorielle des équations de Maxwell se réduit à en faire des combinaisons linéaires ce qui peut sembler un exercice purement formel.

C'est plutôt à l'idée fondamentale de « fusion », de M. L. de Broglie, que se rattache notre travail. La correspondance que nous définissons est quadratique et non linéaire comme la précédente. Elle est, naturellement, invariante : le bivecteur appartient au carré tensoriel de chacun des spineurs correspondants. La condition de réalité de l'onde électromagnétique et la condition d'égalité des tenseurs énergie-impulsion électromagnétique d'une part et mécanique d'autre part, achèvent de la déterminer. Elle est alors réciproque, de type (1,2), c'est-à-dire qu'un bivecteur correspond, biunivoquement, à un couple de spineurs.

Les caractères de biunivocité et d'invariance de cette correspondance entre bivecteurs simples et isotropes et couples de spineurs simples, permettent de la considérer comme propre à décrire une équivalence physique objective : Une onde plane électromagnétique pourrait être un couple de corpuscules de Dirac, ou un ensemble de tels couples, pour des raisons de normalisation de l'onde spinorielle. Chacun de ces couples serait un photon-onde plane. Les corpuscules de chaque couple sont à masse nulle ; leurs densités de vecteurs-courants sont égales ; leurs densités de moments électromagnétiques sont opposées ; leurs densités de spin sont nulles ; on montre que cette dernière condition équivaut à ce que chacun d'eux admet les mêmes densités de Dirac qu'une « lacune associée » c'est-à-dire à ce qu'il est confondu avec elle,

ou, en un certain sens, annihilé, ou, encore, de nature indéterminée (électron ou positon) <sup>(1)</sup>.

**1. Une correspondance entre bivecteurs et spineurs.** — Un semi-spineur est un couple de paramètres homogènes pour un biplan totalement isotrope dans l'univers quadri-dimensionnel. Pour en donner une définition plus intuitive, propre à éviter, autant que possible, le recours à une de ces représentations particulières qui masquent le caractère géométrique des raisonnements et rendent très pénible la comparaison des nombreux travaux sur ces sujets, faisons correspondre, au cône isotrope de sommet O, dans un espace à quatre dimensions, [M], dont l'équation est :  $g_{ik} X^i X^k = 0$ , la quadrique [A] qui admet cette équation pour équation homogène dans un espace projectif auxiliaire à trois dimensions, [m], dans lequel nous supposons les axes orthonormaux.

Les symétries et rotations, dans [M], qui invarient O, ont pour image, ou trace, dans [m], les transformations homographiques invariant la quadrique [A]. Ce sont les rotations-retournements d'une géométrie de Cayley, admettant [A] pour absolu. Les biplans totalement isotropes passant par O dans [M] sont ceux qui ont pour trace, dans [m], une génératrice rectiligne de [A]. Il y a donc deux espèces de tels biplans.

Il y a une infinité de représentations paramétriques,  $m(u, v)$ , de [A], rapportée à ses génératrices rectilignes,  $u = \text{constante}$ ,  $v = \text{constante}$  ; les coordonnées homogènes de  $m$  étant bilinéaires en  $u$  et  $v$ .

Pour une représentation déterminée, et pour une symétrie ou rotation données dans [M], les  $u$  et les  $v$  subissent des transformations homographiques déterminées. Par suite, en posant :  $u = a/b$ ,  $v = c/d$ , les  $a, b$ , d'une part, et les  $c, d$ , d'autre part, subissent des transformations linéaires que

<sup>(1)</sup> Ce mémoire développe une communication faite au Congrès International des Mathématiciens, Amsterdam, septembre 1954.

l'on peut déterminer. Chacun des couples  $(a, b)$  ou  $(c, d)$  constitue donc l'objet d'une représentation linéaire du groupe des rotations-retournements autour de O dans [M] ; ce sont les semi-spineurs de chaque espèce ; on peut les noter par des matrices du second ordre :

$$\varphi = \begin{vmatrix} a & b \\ b & c \end{vmatrix} = \begin{vmatrix} \varphi_1 & \\ & \varphi_2 \end{vmatrix}, \quad \eta = \begin{vmatrix} c & d \\ d & a \end{vmatrix} = \begin{vmatrix} \eta_1 & \\ & \eta_2 \end{vmatrix}.$$

A un biplan totalement isotrope correspond donc une infinité, à un paramètre,  $\varphi_1$  par exemple, de semi-spineurs d'espèce déterminée.

Mais à ce biplan correspond aussi une infinité de bivecteurs totalement isotropes, c'est-à-dire isotropes et autoduals ou antiduals, dépendant d'un facteur scalaire arbitraire. Notre correspondance sera construite entre ces semi-spineurs et ces bivecteurs totalement isotropes de même biplan.

Un spineur est l'ensemble de deux semi-spineurs d'espèces différentes ; en notation matricielle du quatrième ordre :

$$\Psi = \begin{vmatrix} a & b \\ b & c \\ c & d \\ d & a \end{vmatrix} = \begin{vmatrix} \varphi_1 & \\ & \varphi_2 \\ \eta_1 & \\ & \eta_2 \end{vmatrix} = \begin{vmatrix} \varphi_1 & \\ & 0 \\ 0 & \\ & \eta_2 \end{vmatrix} + \begin{vmatrix} 0 & \\ & \eta_1 \\ \eta_1 & \\ & \eta_2 \end{vmatrix} = \varphi + \eta.$$

C'est un tenseur pour les rotations-retournements autour de O.

Le produit tensoriel de deux spineurs se décompose, en tenseurs irréductibles : un scalaire, un vecteur, un bivecteur, un trivecteur, et un quatre-vecteur ; le bivecteur lui-même se décompose en semi-bivecteurs. Chacun de ces tenseurs est défini à un facteur scalaire près. Nous supposons ce facteur scalaire choisi pour chacun des tenseurs, c'est-à-dire que nous supposons la décomposition complètement définie.

On démontre que pour cette décomposition le carré tensoriel d'un demi-spineur est l'un des bivecteurs totalement isotropes (ou semi-bivecteurs isotropes) attachés au même biplan totalement isotrope, ou à la même génératrice rectiligne de [A].

On établit donc une correspondance tensorielle entre semi-spineurs et semi-bivecteurs isotropes en imposant que le second soit le carré tensoriel du premier ; cette correspondance est bien connue. Le bivecteur détermine son semi-spineur au signe près. C'est une correspondance entre deux paramètres, spinoriel et bivectoriel, des biplans totalement isotropes.

Un bivecteur isotrope simple se décompose de façon unique en somme de deux semi-bivecteurs isotropes. La simplicité du bivecteur, qui s'écrit :  $al + bm + cn = 0$ , où  $a, b, c, l, m, n$ , sont ses coordonnées convenablement rangées, permet de considérer ces coordonnées comme des coordonnées de Plucker de la droite de [m] qui est la trace de son biplan. L'isotropie du bivecteur impose

à cette droite d'être tangente à [A], par exemple au point m. La décomposition envisagée s'interprète alors comme celle d'un vecteur glissant sur une tangente à [A] en une somme de deux vecteurs glissant sur des génératrices de [A]. Cette décomposition est bien unique et s'effectue sur les deux génératrices de systèmes différents qui passent par le contact m.

La correspondance entre semi-bivecteurs isotropes et semi-spineurs définie plus haut induit donc une correspondance entre bivecteurs simples isotropes et spineurs. Le bivecteur appartenant au carré tensoriel du spineur. Le bivecteur détermine son spineur au signe près de chacun des semi-spineurs, c'est-à-dire au produit près par  $\pm K$ , où  $K$  est la matrice :  $K = \begin{vmatrix} 1 & \\ & -1 \end{vmatrix}$ .

Faisons intervenir maintenant des exigences de réalité. La conjugaison des spineurs :  $\Psi' = M \Psi^*$ , est anti-involutive pour les absolus réels convexes (relativité restreinte). Les carrés tensoriels de deux spineurs conjugués se décomposent en tenseurs, conjugués et contiennent, en particulier, des bivecteurs conjugués. Dans la correspondance entre bivecteurs simples isotropes et spineurs, définie ci-dessus, imposons que le bivecteur soit réel. Les spineurs qui lui correspondent étant  $\Psi$  et  $\pm K \Psi$ , la condition de réalité impose : soit  $\Psi = \Psi'$ , qui est exclue par le caractère anti-involutif de la conjugaison des spineurs, soit  $\Psi = \pm K \Psi'$ , qui est acceptable. On vérifie qu'en représentation de Neumann ceci s'écrit :

$$\Psi = \pm K \Psi' = \pm \gamma_3 \Psi^* = \pm \Psi^-;$$

nous appellerons donc le spineur  $\Psi^- = K \Psi'$  : « spineur inverse de  $\Psi$  », (1).

Donc : On peut définir une correspondance, bi-univoque et tensorielle, entre l'ensemble des bivecteurs simples isotropes réels, et l'ensemble des couples de spineurs conjugués égaux, au signe près, à leurs inverses respectifs, en imposant à un tel bivecteur d'appartenir à une décomposition tensorielle donnée du carré tensoriel de chacun de ses spineurs associés.

La relation :  $\Psi = \pm K \Psi'$ , exprime aussi que les spineurs  $\Psi$  et  $\Psi'$  correspondant au bivecteur, sont symétriques l'un de l'autre par rapport à l'origine des coordonnées d'univers.

**2. Remarques sur diverses définitions de l'équivalence des spineurs.** — La définition de l'équivalence quantique des spineurs est la traduction de ce que l'on appelle le « principe d'invariance de jauge de première espèce » :

$$(\Psi_1 \stackrel{(a)}{\sim} \Psi_2) \stackrel{\text{dét.}}{\longleftrightarrow} [(\Psi_1 = \lambda \Psi_2) \text{ et } (|\lambda| = 1)].$$

On voit immédiatement que, pour deux spineurs,  $\Psi^{(1)}$  et  $\Psi^{(2)}$ , soient quantiquement équivalents, il



faut et il suffit que les tenseurs de décomposition du produit de chacun d'eux par son conjugué soient identiques ; ceci se traduit en effet par :

$$\Psi_A^{(1)} \Psi_B^{(1)\times} = \Psi_A^{(2)} \Psi_B^{(2)\times}, \quad (A, B = 1, 2).$$

On sait que, si  $\Psi$ , décrit un corpuscule, les tenseurs de décomposition du produit de  $\Psi$  par  $\Psi'$  sont les densités tensorielles de Dirac attachées à ce corpuscule.

D'un point de vue strictement tensoriel, ou géométrique, il est naturel d'après ce qui précède, de définir l'équivalence des semi-spineurs par l'égalité des semi-bivecteurs isotropes correspondants. Cela impose que l'on définisse l'équivalence des spineurs par l'égalité, au signe près, de leurs semi-spineurs de même espèce :

$$(\Psi_1 \sim \Psi_2) \xleftrightarrow{\text{déf.}} [(\Psi_1 = \pm \Psi_2) \text{ ou } (\Psi_1 = \pm K \Psi_2)].$$

L'équivalence la moins stricte, impliquant à la fois équivalence quantique et tensorielle, est définie par :

$$(\Psi_1 \sim \Psi_2) \xleftrightarrow{\text{déf.}} (\Psi_1 = \pm \Psi_2).$$

Nous l'appellerons « équivalence forte » des spineurs.

Le principe d'invariance de jauge de première espèce et, par suite, la définition de l'équivalence quantique des spineurs, sont des traductions mathématiques de l'hypothèse physique qu'un corpuscule est entièrement décrit par ses densités de Dirac, ou que l'égalité de ces densités pour deux corpuscules entraîne qu'ils sont confondus.

L'objectivation de notre équivalence forte consisterait à lui faire traduire une « confusion forte » des corpuscules, plus stricte que la confusion quantique ; cela impliquerait l'hypothèse physique que la description d'un corpuscule par les seules densités de Dirac n'est pas complète.

**3. Application des résultats géométriques précédents à la description corpusculaire des ondes électromagnétiques planes.** — On sait qu'un corpuscule de Dirac, de masse  $m$ , de charge  $-e$ , en présence du champ électromagnétique dérivant du quadripotential  $A$  de matrice  $A$  est décrit par un champ de spineurs  $\Psi(M)$ , solution de l'équation de Dirac :

$$\left( \frac{\hbar}{2\pi i} \nabla - \frac{e}{c} A \right) \cdot \Psi(M) = -imc \Psi(M), \quad (1)$$

où  $\nabla$  est la matrice du vecteur symbolique réel d'espace-temps de coordonnées d'univers  $\partial/\partial X^i$ . On en déduit les équations auxquelles satisfont  $\Psi'(M)$  et  $\Psi^-(M)$ , en utilisant la propriété  $MM^\times = -1$  de la matrice de conjugaison :

$$M \left( \frac{\hbar}{2\pi i} \nabla^\times + \frac{e}{c} A^\times \right) M^\times M \Psi^\times(M) = imc \cdot M \cdot \Psi^\times(M)$$

or, si  $X$  est une matrice vectorielle et  $X'$  la matrice

du vecteur conjugué, on a :  $X' = MX^\times M^\times$ , et si le vecteur est réel :  $X' = X$  ; d'où :

$$\left( \frac{\hbar}{2\pi i} \nabla + \frac{e}{c} A \right) \cdot \Psi'(M) = imc \Psi'(M), \quad (2)$$

Multipliant les deux membres de (2) par  $K$  à gauche, et utilisant l'anticommutation de  $K$  avec toute matrice vectorielle, il vient :

$$\left( \frac{\hbar}{2\pi i} \nabla + \frac{e}{c} A \right) \cdot \Psi^-(M) = -imc \Psi^-(M). \quad (3)$$

Cette équation (3) s'obtient à partir de (1) en changeant  $e$  en  $-e$  ;  $\Psi(M)$  et  $\Psi^-(M)$  décrivent donc des corpuscules de Dirac de charge opposée.

Considérons l'opérateur : « composante de l'opérateur  $\left( \frac{\hbar}{2\pi i} \nabla - \frac{e}{c} A \right)$  sur le vecteur unitaire réel  $U$  » ; cet opérateur est :

$$1/2 \left[ \left( \frac{\hbar}{2\pi i} \nabla - \frac{e}{c} A \right) U + U \left( \frac{\hbar}{2\pi i} \nabla - \frac{e}{c} A \right) \right].$$

Soit  $\Psi(M)$  un état propre de cet opérateur correspondant à la valeur propre réelle  $\lambda$  ; on a donc :

$$1/2 \left[ \left( \frac{\hbar}{2\pi i} \nabla - \frac{e}{c} A \right) U + U \left( \frac{\hbar}{2\pi i} \nabla - \frac{e}{c} A \right) \right] \cdot \Psi(M) = \lambda \cdot \Psi(M)$$

d'où, en calculant comme pour passer de (1) à (3) :

$$1/2 \left[ \left( \frac{\hbar}{2\pi i} \nabla + \frac{e}{c} A \right) U + U \left( \frac{\hbar}{2\pi i} \nabla + \frac{e}{c} A \right) \right] \cdot \Psi^-(M) = -\lambda \cdot \Psi^-(M)$$

ce qui montre que  $\Psi^-(M)$  est un état propre de l'opérateur correspondant, pour (3), au précédent, avec une valeur propre opposée. Les opérateurs « énergie cinétique »  $(W - eA_0)$  et  $(W + eA_0)$ , des deux corpuscules, sont de cette sorte, en prenant  $U$  sur l'axe temporel. Donc, à tout état propre  $\Psi(M)$  de cette énergie pour (1) correspond l'état propre  $\Psi^-(M)$  de l'énergie pour (3), les valeurs propres de ces énergies étant opposées. Une seule de ces valeurs, celle qui est positive, est acceptable, et le spineur correspondant à celle-là décrit un véritable corpuscule (électron ou positon) ; l'autre spineur décrit ce que nous appellerons une lacune (4 § 79) que nous dirons associée au corpuscule précédent. La correspondance « corpuscule-Lacune associée »,  $\Psi(M) \longleftrightarrow \Psi^-(M)$ , est involutive, car il est immédiat que :  $(\Psi^-)^- = \Psi$ .

D'autre part, une onde électromagnétique, dans le vide, est un champ de bivecteurs  $B(M)$ , dans l'univers  $[M]$ , solution des équations de Maxwell. Soit  $DB$  le dual de  $B$  et  $\nabla$  le vecteur symbolique réel de coordonnées  $\partial/\partial X^i$ . Les équations de Maxwell expriment que le vecteur  $\nabla$  engendre avec  $B$  un trivecteur,  $(\nabla, B)$  nul ; et que  $\nabla$  engendre aussi avec  $DB$  un trivecteur  $(\nabla, DB)$  nul ; ces équations s'écrivent :

$$\begin{cases} (\Delta, B) = 0 \\ (\Delta, DB) = 0. \end{cases} \quad (4)$$

Une onde électromagnétique plane est une solution des (4) de la forme :

$$\mathbf{B}(M) = \mathbf{B} \exp \frac{2\pi i}{h} (\mathbf{OP} \cdot \mathbf{OM})$$

où  $\mathbf{B}$  est un bivecteur réel fixe (sa réalité traduit celle des champs électrique :  $\mathbf{E}^{\mathbf{K}} = -i\mathbf{B}^{\mathbf{K}4}$ , et magnétique :  $\mathbf{H}^{\mathbf{K}} = \mathbf{B}^{ij}$ ).

Pour ces ondes planes, les (4) s'écrivent :  $(\mathbf{OP}, \mathbf{B}) = 0$ ,  $(\mathbf{OP}, \mathbf{DB}) = 0$ . Cela implique d'abord que  $\mathbf{B}$  est simple. Elles expriment que le vecteur  $\mathbf{OP}$ , réel, que nous appellerons « propagation » de l'onde, appartient à la fois au biplan de  $\mathbf{B}$  et au biplan de  $\mathbf{DB}$  ; donc  $\mathbf{B}$  est isotrope. En définitive le bivecteur fixe d'une onde plane,  $\mathbf{B}$ , est simple, isotrope, réel, orthogonal au vecteur isotrope  $\mathbf{OP}$ .

Analytiquement sa simplicité s'écrit :

$$\mathbf{B}^{ij}\mathbf{B}^{\mathbf{K}4} + \mathbf{B}^{i\mathbf{K}}\mathbf{B}^{j4} + \mathbf{B}^{\mathbf{K}i}\mathbf{B}^{j4} = 0.$$

elle traduit l'orthogonalité des champs électrique et magnétique ; et les (4) s'écrivent :

$$p^i \cdot \mathbf{B}^{i\mathbf{K}} + p^j \cdot \mathbf{B}^{\mathbf{K}i} + p^{\mathbf{K}} \cdot \mathbf{B}^{ij} = 0, \text{ et } p_i \cdot \mathbf{B}^{ij} = 0.$$

En l'absence de champ les équations corpusculaires de Dirac admettent aussi des solutions spinorielles « planes » ;

$$\Psi(M) = \Psi \exp \frac{2\pi i}{h} (\mathbf{OP}_1 \cdot \mathbf{OM})$$

où  $\mathbf{OP}_1$  est un vecteur réel, l'impulsion d'univers, et  $\Psi$  un spineur satisfaisant à la condition matricielle :

$$\mathbf{OP}_1 \cdot \Psi = -imc\Psi.$$

Faisons alors correspondre à toute onde plane électromagnétique les spineurs au carré tensoriel desquels elle appartient. Ces spineurs seront nécessairement de la forme :

$$\Psi(M) = \Psi \exp \frac{2\pi i}{h} \left( \frac{\mathbf{OP}}{2} \cdot \mathbf{OM} \right),$$

$\Psi$  étant l'un des deux spineurs, fixes, conjugués, au carré desquels appartient le bivecteur fixe  $\mathbf{B}$  de l'onde, l'impulsion corpusculaire étant la moitié de la propagation électromagnétique ; il y a donc deux solutions :

$$\Psi_1(M) = \Psi \exp \frac{2\pi i}{h} \left( \frac{\mathbf{OP}}{2} \cdot \mathbf{OM} \right),$$

$$\text{et : } \Psi_2(M) = \Psi' \exp \frac{2\pi i}{h} \left( \frac{\mathbf{OP}}{2} \cdot \mathbf{OM} \right).$$

L'impulsion corpusculaire est donc isotrope comme la propagation ;  $\mathbf{OP}_1^2 = 0$  ; d'où :  $m = 0$  ; les corpuscules considérés sont donc de masse nulle.

On a vu d'autre part que la réalité de  $\mathbf{B}$  impose la condition :  $\Psi = \pm \Psi^-$ , ou :  $\Psi \sim \Psi^-$  (équivalence forte) ; et  $\Psi_1(M)$  et  $\Psi_2(M)$  sont définis à une équivalence forte près.

**4. Propriétés des spineurs attachés à une onde électromagnétique plane.** — Étudions les propriétés des deux corpuscules décrits par  $\Psi_1(M)$  et  $\Psi_2(M)$  et les relations qui les lient :

Les densités de Dirac attachées à l'un des corpuscules, celui de spineur  $\Psi_1(M)$ , par exemple, sont uniformes, comme c'est le cas pour tout spineur plan, et égales aux tenseurs extraits du produit du spineur fixe  $\Psi$  par son conjugué  $\Psi'$ .

Or :  $\Psi \sim \Psi^-$ , et, *a fortiori* :  $\Psi \stackrel{(a)}{\sim} \Psi^-$  ; examinons les conséquences de cette dernière hypothèse :

$\Psi \stackrel{(a)}{\sim} \Psi^-$  sans supposer que  $\Psi$  soit fixe, ni plan.

Les quantités  $\tilde{\Psi}' \cdot C \cdot X \cdot \Psi$ , d'où l'on extrait les densités de Dirac sont alors, à un facteur de module 1 près, égales à :  $\tilde{\Psi} \cdot C \cdot K \cdot X \cdot \Psi$ . Or  $K \cdot X$  est la matrice,

$X$ , du 4-p vecteur, dual de  $X$ . Les densités de

Dirac sont donc, à un facteur scalaire près, duales des tenseurs de décomposition du carré tensoriel de  $\Psi$ . Les seules d'entre elles qui ne soient pas nulles sont donc celles qui correspondent à  $p = 1$  (densité de vecteur-courant), c'est-à-dire :  $4 - p = 3$ , et  $4 - p = 2$ , soit  $p = 2$  (densité de moment électromagnétique).

En particulier la densité de Dirac correspondant à  $p = 3$  est nulle pour un spineur quantiquement équivalent à son inverse, c'est-à-dire si :  $\Psi' = K K \Psi$ . Or ce trivecteur a pour composantes en représentation de Neumann :  $f^i = \tilde{\Psi}^{\times} \cdot \gamma_4 \gamma_i \gamma_{\mathbf{K}} \gamma_1 \cdot \Psi$  ; c'est la densité de spin du corpuscule. Réciproquement, si la densité de spin est nulle, le quatre-vecteur  $\tilde{\Psi}' \cdot C \cdot X \cdot \Psi$  est nul quelle que soit la matrice trivectorielle  $X$ . Supposons ce trivecteur engendré par trois vecteurs unitaires orthogonaux, de matrices  $A, B, C$  :

$$X = A \cdot B \cdot C = \left\| \frac{a^{-1} \cdot b \cdot c^{-1}}{a \cdot b^{-1} \cdot c} \right\| = \left\| \frac{1}{d} \right\|,$$

$$\text{avec } d = \begin{vmatrix} u & v \\ w & z \end{vmatrix}.$$

posons :

$$\tilde{\Psi} = \| m \ n \ p \ q \|, \text{ et } \Psi' = \| m' \ n' \ p' \ q' \|;$$

alors :

$$\tilde{\Psi}' \cdot C \cdot X \cdot \Psi = u(m'q + q'm) + v(n'q + q'n) - w(m'p + p'm) - z(n'p + p'n)$$

et ceci doit être identiquement nul en  $u, v, w, z$  ; les coefficients de ces variables dans l'équation précédents doivent être nuls.

Si  $|m' \ m|$  n'était pas nul cela impliquerait :  $p = p' = 0$  et  $q = q' = 0$  et, par suite,  $\Psi$  et  $\Psi'$  seraient des semi-spineurs de même espèce, ce qui



est impossible pour des semi-spineurs conjugués.

Donc :  $\begin{vmatrix} m' & m \\ n' & n \end{vmatrix} = 0$   
 ou :  $n' = kn$ ,  $m' = km$  ; puis :  $p' = -kp$ ,  
 $q' = -kq$ .

Mais :  $\Psi' = M \cdot \Psi^\times = \begin{vmatrix} O & M_1 \\ M_2 & O \end{vmatrix} \cdot \Psi^\times$ , avec :  
 $M_1 M_2^\times = -1$  ; ce qui, joint aux résultats  
 précédents, implique :

$$M_1 \cdot \begin{vmatrix} p^\times \\ q^\times \end{vmatrix} = k \begin{vmatrix} m \\ n \end{vmatrix},$$

$$\text{et : } M_2 \cdot \begin{vmatrix} m^\times \\ n^\times \end{vmatrix} = -k \begin{vmatrix} p \\ q \end{vmatrix} = M_2 \cdot |k|^2 \cdot \begin{vmatrix} m^\times \\ n^\times \end{vmatrix} ;$$

$$\text{d'où : } |k|^2 = 1 ;$$

puis :  $\Psi' = kK\Psi$ , c'est-à-dire :  $\Psi \stackrel{(a)}{\sim} \Psi^-$  :  
*Pour qu'un corpuscule soit à densité de spin nulle  
 il faut et il suffit qu'il soit confondu (quantique-  
 ment) avec la lacune associée.*

Les densités de Dirac non nulles attachées au spineur  $\Psi_1(M)$  sont extraites du produit de  $\Psi$  par  $\Psi'$  ; celles attachées à  $\Psi_2(M)$  sont extraites du produit de  $\Psi'$  par son conjugué, qui est  $-\Psi$  ; on passe donc des premières aux secondes en permutant  $\Psi$  et  $\Psi'$  et en changeant les signes ; les tenseurs antisymétriques, qui correspondent à  $p = 1$ , ou  $0$ , ou  $4$ , sont donc égaux, et les tenseurs symétriques, qui correspondent à  $p = 3$ , ou  $2$ , sont opposés. Les seuls de ces tenseurs qui ne soient pas nuls sont, nous l'avons vu, les densités de vecteurs-courants ( $p = 1$ ), qui sont donc égaux, et les densités de moments électromagnétiques, ( $p = 2$ ), qui sont donc opposés.

Si un spineur de la forme de  $\Psi_1(M)$  est solution d'une équation de Dirac telle que (1), (ou (3)), le raisonnement du paragraphe 3 montre immédiatement que le spineur associé  $\Psi_2(M)$ , qui est différent de  $\Psi_1(M)$ , est solution de la même équation (1), (ou (3)). Deux spineurs tels que  $\Psi_1(M)$  et  $\Psi_2(M)$  décrivent donc des corpuscules de même espèce, par exemple deux électrons, (ou deux positons), ayant même densité de courant, mais des densités de spin opposées et des densités de moment électromagnétiques opposées.

En résumé : De la forme de  $\Psi_1(M)$  et de  $\Psi_2(M)$ , et de la condition :  $\Psi \sim \Psi^-$ , on déduit :

1°  $\Psi_1(M) \stackrel{(a)}{\sim} \Psi_1^-(M)$ , et :  $\Psi_2(M) \stackrel{(a)}{\sim} \Psi_2^-(M)$ , c'est-à-dire que chacun de ces spineurs est quantiquement équivalent à son inverse. Si l'un d'eux décrit un corpuscule, celui-ci sera donc quantiquement confondu avec sa lacune, c'est-à-dire que leurs densités de Dirac seront les mêmes. Cette confusion équivaut à l'annulation de la densité du spin ; elle traduit une sorte d'indétermination de la nature du corpuscule : électron ou positon.

2°  $\Psi_2(M) \stackrel{(a)}{\sim} \Psi_1^-(M)$  ; c'est-à-dire que chacun des deux spineurs dont le carré tensoriel contient

une onde électromagnétique plane donnée, est quantiquement équivalent au conjugué de l'autre. Il suit de là que les densités de vecteur courant qui leur correspondent sont égales et les densités de moment électromagnétiques opposées.

3° Les deux conditions précédentes sont cependant plus faibles que celles qui déterminent la dépendance entre  $\Psi_1(M)$  et  $\Psi_2(M)$ , ces dernières s'exprimant par des équivalences fortes.

4° Les impulsions des corpuscules décrits par  $\Psi_1(M)$  et par  $\Psi_2(M)$  sont isotropes, d'où il suit que leurs masses sont nulles.

5. Spécification de la correspondance entre bivecteurs électromagnétiques plans et spineurs corpusculaires plans par la condition d'égalité des tenseurs énergie-impulsion. — Les résultats établis jusqu'ici sont valables quel que soit le choix du facteur scalaire qui spécifie chacun des tenseurs extraits du produit de deux spineurs, c'est-à-dire qui détermine la décomposition de ce produit, et, en particulier, qui détermine le bivecteur  $B$  extrait du carré tensoriel d'un spineur  $\Psi$  donné. On peut, par exemple, prendre :

$$B^{ij} = \tilde{\Psi} C \gamma_{ij} \Psi$$

où  $C$  est une matrice universelle convenable (6). Mais on pourrait, plus généralement, poser :

$$B^{ij} = \mu \tilde{\Psi} C \gamma_{ij} \Psi,$$

et choisir le scalaire  $\mu$  de façon à réaliser une correspondance plus stricte entre  $B$  et  $\Psi$ . On peut, éventuellement, supposer que  $\mu$  est une fonction de  $B$ , c'est-à-dire aussi de  $\Psi$ .

Nous allons démontrer que l'on détermine un coefficient  $\mu$  convenable, c'est-à-dire que l'on lève l'indétermination de la correspondance entre  $B$  et  $\Psi$ , en imposant l'égalité du tenseur impulsion-énergie mécanique du couple de corpuscules,  $T^{ij}$ , avec le tenseur de Maxwell de l'onde  $E. M$ ,  $M^{ij}$ , ou plutôt avec le tenseur densité macroscopique moyenne d'impulsion-énergie du rayonnement, ce dernier,  $\bar{M}^{ij}$ , étant, comme  $T^{ij}$ , indépendant du facteur exponentiel,  $\exp \frac{2\pi i}{h} (OP \cdot OM)$

(3, ch. IV, § 4) ;  $\bar{M}^{ij}$  ne dépend que de  $B$ .

En coordonnées d'univers :

$$M^{ij} = B^{ij} B^{ij}.$$

Les deux corpuscules correspondant à  $\Psi$  et à  $\Psi'$  ont le même vecteur courant :  $\varphi$ . Ce vecteur courant est porté par la droite isotrope perpendiculaire au bi-plan de  $B$ . On peut donc toujours engendrer  $B$  par le vecteur  $\varphi$  et un autre vecteur,  $V$ , convenablement choisi dans son biplan :

$$B^{ij} = \varphi^i V^j - \varphi^j V^i.$$

On trouve alors :

$$M^{ij} = \varphi^i \cdot V^j \cdot (\varphi^i \cdot V^j + \varphi^j \cdot V^i) \\ - V^i \cdot V^j \cdot \varphi^i \cdot \varphi^j - \varphi^i \cdot \varphi^j \cdot V^i \cdot V^j ;$$

mais l'isotropie de  $\varphi$  et son orthogonalité à  $V$  impliquent :

$$\varphi^i \cdot \varphi^i = 0, \text{ et } V^i \cdot \varphi^i = 0 ; \text{ il reste donc :}$$

$$M^{ij} = -\varphi^i \cdot \varphi^j \cdot V^i \cdot V^j$$

en particulier :  $M^{i4} = -\varphi^i (\varphi^4 \cdot V^i V^4)$  ; les  $M^{i4}$ , pour  $i = 1, 2, 3, 4$ , sont les coordonnées d'univers d'un vecteur colinéaire à  $\varphi$ , donc colinéaire à la propagation de l'onde E. M. On a :  $\bar{M}^{i4} = \frac{1}{2} M^{i4}$ .

L'impulsion-énergie mécanique de chacun des deux corpuscules est :

$$T^{i4} = \varphi^i \cdot \frac{p^4}{2} = \varphi^i \cdot \frac{p^i}{2} \text{ (car } \varphi \text{ est colinéaire à } \mathbf{OP}) .$$

$$\text{L'égalité : } \bar{M}^{i4} = T^{i4}, \text{ équivaut donc à :} \\ p^4 = -\varphi^4 \cdot \frac{V^i \cdot V^i}{2} \text{ ou à : } \mathbf{OP} = -\frac{(V^i V^i)}{2} \cdot \varphi .$$

On aura alors :  $\bar{M}^{ij} = T^{ij}$ , pour tous  $i$  et  $j$ .

Étudions la condition :

$$\mathbf{OP} = -\frac{(V^i V^i)}{2} \cdot \varphi, \quad (5.1)$$

équivalente à l'égalité :  $\bar{M}^{i4} = T^{i4}$ .

$(V^i V^i)$  est déterminé par la donnée de  $\mathbf{B}$  et  $\varphi$ . En effet, soit :  $V' = x\varphi + yV$  un vecteur du biplan de  $\mathbf{B}$  ; pour que le bivecteur engendré par  $\varphi$  et par  $V'$  soit égal à  $\mathbf{B}$  il est immédiat qu'il faut et suffit que  $y = 1$  ; mais alors :

$$(V^i V^i) = x^2(\varphi^i \cdot \varphi^i) + 2x(\varphi^i \cdot V^i) + (V^i \cdot V^i) = (V^i \cdot V^i) .$$

Supposons que l'on ait posé :  $B^{ij} = \tilde{\Psi} C \gamma_{ij} \Psi$  ; (c'est-à-dire que l'on ait fixé :  $\mu = 1$ , ou, plus généralement,  $\mu = \text{constante arbitraire}$ ). Alors la donnée de  $\mathbf{B}$  est équivalente à la donnée du couple de spineurs  $\Psi$  et  $\Psi'$  (avec  $\Psi' = \tilde{\Psi}$ ). L'une quelconque de ces données détermine  $\varphi$  ; donc elle détermine le facteur  $(V^i \cdot V^i)$  ; la relation à satisfaire :  $\mathbf{OP} = -\frac{(V^i \cdot V^i)}{2} \cdot \varphi$  détermine donc  $\mathbf{OP}$ , quand  $\mathbf{B}$ , ou  $\Psi$  sont donnés.

Or ce résultat restreint le nombre de degrés de liberté d'une onde plane E. M. Une telle onde est en effet définie par la donnée d'un bivecteur simple isotrope réel  $\mathbf{B}$ , qui détermine la direction d'univers de la propagation, et par la donnée de l'une quelconque des coordonnées de cette propagation d'univers, par exemple de  $p^4$ , ou de la fréquence  $\nu$  (qui lui est liée par :  $2\pi p^4 = h\nu$ ) ; cette fréquence étant arbitrairement donnée ; sa détermination par  $\mathbf{B}$  fournit donc des ondes planes E. M. spéciales. On ne peut donc, si  $\mu$  est fixé, imposer à la correspondance biunivoque et tensorielle entre les ondes planes E. M. et les ondes planes corpuscu-

lares à spin nul de satisfaire à la condition  $\bar{M}^{i4} = T^{i4}$  sans restreindre cette correspondance à des ondes particulières.

Remarquons, à propos du résultat précédent, que la donnée d'un spineur  $\Psi$  détermine complètement l'onde plane corpusculaire correspondante si la masse  $m_0$  n'est pas nulle ; dans ce cas, en effet, l'équation géométrique de Dirac :  $OP \cdot \Psi = im_0 c \Psi$  équivaut à un système de quatre équations linéaires et non homogènes aux quatre coordonnées de l'impulsion-énergie  $\mathbf{OP}$  ; celle-ci est donc déterminée par  $\Psi$ . Si, au contraire, la masse est nulle, l'équation géométrique de Dirac :  $OP \cdot \Psi = 0$ , si elle admet la solution  $\mathbf{OP}_0$  admet toute solution :  $\mathbf{OP} = \lambda \mathbf{OP}_0$ , quelque soit  $\lambda$  ; on peut donc fixer arbitrairement l'une des composantes de  $\mathbf{OP}$ , par exemple,  $p^4$  ; la sauvegarde de cette possibilité semble essentielle à la mise en correspondance des ondes corpusculaires et des ondes planes E. M. et appuie l'hypothèse que la masse des corpuscules envisagés est nulle.

Il faut donc prendre la correspondance entre  $\mathbf{B}$  et  $\Psi$  sous la forme :

$$B^{ij} = \mu \tilde{\Psi} C \gamma_{ij} \Psi,$$

et rechercher si le scalaire réel  $\mu$  peut être déterminé, quand  $\mathbf{B}(\mathbf{M})$  est donné, ou quand  $\Psi(\mathbf{M})$  est donné, de telle sorte que la condition  $\bar{M}^{i4} = T^{i4}$ , c'est-à-dire :  $\mathbf{OP} = -\frac{1}{2} (V^i V^i) \cdot \varphi$ , soit satisfaite.

Remplaçons dans cette condition le vecteur  $V$  par un vecteur plus significatif. Dans le cas de l'onde E. M. plane :  $\mathbf{B}(\mathbf{M}) = \mathbf{B} \cdot \exp \frac{2\pi i}{h} (\mathbf{OP} \cdot \mathbf{OM})$ ,

on peut engendrer le bivecteur  $\mathbf{B}$  de cette onde par deux vecteurs dont l'un soit  $\mathbf{OP}$  qui est dans son biplan ; soit  $\mathbf{A}$  le second de ces vecteurs :  $\mathbf{B} = (\mathbf{OP}, \mathbf{A})$ . On peut dire de  $\mathbf{A}$  ce qu'on a dit plus haut de  $V$  :  $\mathbf{A}$  est partiellement indéterminé, on peut le remplacer par l'un quelconque des vecteurs  $\mathbf{A} + \lambda \mathbf{OP}$ ,  $\lambda$  étant un scalaire arbitraire ; cependant le carré scalaire de  $\mathbf{A}$  est déterminé, car :  $(\mathbf{A} + \lambda \mathbf{OP})^2 = \mathbf{A}^2$ .

Prenons pour quadri-potentiel d'univers le vecteur :

$$\alpha(\mathbf{M}) = \frac{h}{2\pi i} \cdot \mathbf{A} \cdot \exp \frac{2\pi i}{h} (\mathbf{OP} \cdot \mathbf{OM}),$$

on aura bien :

$$\mathbf{B}(\mathbf{M}) = (\nabla, \alpha(\mathbf{M})).$$

J'appelle  $\mathbf{A}$  : « potentiel de l'onde plane ». Si l'on a :  $\mathbf{OP} = k \cdot \varphi$  et :  $\mathbf{B} = (\varphi, V)$ , on aura :  $\mathbf{B} = \left( \mathbf{OP}, \frac{V}{k} \right)$  ; on pourra donc poser :  $V = k \cdot \mathbf{A}$  ; la condition (5.1), s'écrit :  $k = -k^2 \cdot \mathbf{A}^2$ , puis sous la forme définitive :  $\varphi = -\frac{\mathbf{A}^2}{2} \cdot \mathbf{OP}$ , (5.2), dont tous les éléments ont un sens physique.



Si :  $\Psi(M) = \Psi \cdot \exp \frac{2\pi i}{h} (\mathbf{OP} \cdot \mathbf{OM})$  est donné,

$\varphi$  et  $\mathbf{OP}$  sont déterminés ; posons :  $B_0^{\mu} = \tilde{\Psi} \cdot C \cdot \gamma_{\mu} \cdot \Psi$  ; soit,  $A_0$  l'un des potentiels de  $B_0$  ;  $A_0^2$  est déterminé ; la condition :  $B^{\mu} = \mu B_0^{\mu}$  est satisfaite par :  $A = \mu \cdot A_0$ , puisque  $\mathbf{OP}$  est donné ; or  $A^2$  est donné par (5.2) ; donc la relation :  $A^2 = \mu^2 \cdot A_0^2$ , détermine  $\mu$  au signe près, qu'on fixera arbitrairement.

Si  $B(M) = B \cdot \exp \frac{2\pi i}{h} (\mathbf{OP} \cdot \mathbf{OM})$  est donné,

$B$ ,  $\mathbf{OP}$  et  $A^2$  sont déterminés ; posons :  $B^{\mu} = \tilde{\Psi}_0 C \cdot \gamma_{\mu} \cdot \Psi_0$ , qui détermine  $\varphi_0$ , et  $\Psi_0 = \lambda \Psi$ , (avec  $\lambda$  réel), d'où :  $\mu = \lambda^2$  ; par ailleurs :  $\varphi_0 = \lambda^2 \varphi = \mu \varphi$ , et comme  $\varphi$  est donnée par (5.2),  $\mu$  est déterminé.

**6. Problème : extension aux ondes générales bivectorielles et spinorielles de la correspondance définie entre ondes planes.** — S'il était possible de faire correspondre, tensoriellement et biunivoquement, à tout champ bivectoriel  $B(P)$  défini sur le demi-cône isotrope des propagations un champ bivectoriel  $B(M)$  défini dans l'univers  $[M]$ , par une transformation  $\mathcal{T}$ , et si l'on obtenait ainsi toutes les ondes électromagnétiques solutions des équations de Mawxell, on écrirait :

$$B(M) = \mathcal{T} \cdot B(P), \text{ et } B(P) = \mathcal{T}^{-1} \cdot B(M).$$

S'il était également possible de faire correspondre tensoriellement et biunivoquement, à tout champ spinoriel  $\Psi(P)$  défini sur le demi-cône isotrope des impulsions des corpuscules à masse nulle, un champ spinoriel  $\Psi(M)$ , défini dans l'univers  $[M]$ , par une transformation  $\mathcal{T}_1$ , et si l'on obtenait ainsi toutes les ondes de Dirac, on écrirait :

$$\Psi(M) = \mathcal{T}_1 \cdot \Psi(P), \text{ et } \Psi(P) = \mathcal{T}_1^{-1} \cdot \Psi(M).$$

La correspondance,  $\mathcal{C}$ , que nous avons construite entre ondes électromagnétiques planes et couples de spineurs corpusculaires plans confondus avec leur lacune, induirait une correspondance entre ondes électromagnétiques générales et couples d'ondes corpusculaires :  $B(M) = \mathcal{T} \cdot \mathcal{C} \cdot \mathcal{T}_1^{-1} \cdot (\Psi_1(M), \Psi_2(M))$ , qui serait biunivoque et tensorielle.

On peut penser construire  $\mathcal{T}$  et  $\mathcal{T}_1$ , à partir du principe de superposition des ondes planes, en prenant pour elles des transformations covariantes de Fourier. Malheureusement, si de telles transformations ont été définies (12) c'est seulement dans le cas d'une impulsion corpusculaire non isotrope, c'est-à-dire d'une masse non nulle, et cette hypothèse joue un rôle essentiel dans la théorie. Nous n'avons donc pas, pour le moment,  $\mathcal{T}$  et  $\mathcal{T}_1$ , et notre problème n'a pas de solution dans la voie indiquée ci-dessus.

Peut-être serait-il possible de définir une correspondance intéressante, directement, entre ondes générales de Mawxell et de Dirac.

**7. Problème : normalisation des ondes spinorielles.** — Nous n'avons pas imposé aux spineurs  $\Psi_1(M)$  et  $\Psi_2(M)$  attachés à l'onde  $B(M)$ , la condition de normalisation qui exprime que chacun d'eux est relatif à un corpuscule unique de Dirac. L'intégrale de la densité de probabilité de présence correspondant à chacun d'eux sera, en général, différente de un ; ces deux intégrales seront, d'ailleurs, égales, puisque les vecteurs-courants sont communs. Dans le cas des ondes planes la normalisation sur l'univers  $[M]$  est impossible puisque la densité de présence est uniforme, et le domaine d'intégration devra être, très artificiellement, réduit à une partie finie de cet espace. La normalisation serait plus naturelle pour des spineurs corpusculaires non plans.

Quoi qu'il en soit, si nous nous limitons aux ondes électromagnétiques pour lesquelles les spineurs associés correspondent à des valeurs entières de ces intégrales, nous définissons par là une sorte de quantification des ondes électromagnétiques. On pourrait, si cette valeur entière est  $N$ , considérer cette onde électromagnétique comme équivalente à l'ensemble de  $N$  couples de corpuscules de Dirac.

**9. Relations entre ce mémoire et la théorie du photon de M. L. de Broglie dans le cas des ondes planes.** — Nos raisonnements se sont, jusqu'ici, explicitement limités aux ondes planes E. M. et aux ondes planes spinorielles. C'est donc à leur sujet que doit se faire la comparaison avec la mécanique ondulatoire du photon de M. L. de Broglie.

Dans cette théorie une forme commode des composantes tensorielles,  $\varphi_b$ , à partir de l'onde photonique,  $\Psi$ , est donnée en (2). Ch. VII, § 4, par la formule (39) :

$$\varphi_b = \frac{1}{4} \text{trace} (\gamma_b \cdot \Psi \cdot \Gamma).$$

L'onde photonique générale,  $\Psi$ , est un tenseur à 16 composantes,  $\Psi_{ik}$ , qui se transforme lors des changements de repères égaux comme le produit tensoriel de deux spineurs.

Les ondes planes ne dépendant de  $\mathbf{OM}$  que par le facteur scalaire :  $\exp \frac{2\pi i}{h} (\mathbf{OP} \cdot \mathbf{OM})$ , nous expliciterons ce facteur dans leur expression telle qu'elle est donnée en (2). Ch. VII, § 5 :

$$\begin{aligned} \Psi_{in}^{(p)} &= \Psi_{in} \cdot \exp \frac{2\pi i}{h} (\mathbf{OP} \cdot \mathbf{OM}) \\ &= \Psi_1^{(1)} \cdot \Psi_2^{(2)} \cdot \exp \frac{2\pi i}{h} (\mathbf{OP} \cdot \mathbf{OM}) ; \end{aligned}$$

d'où :  $\Psi_{in} = \Psi_1^{(1)} \Psi_2^{(2)}$ , où  $\Psi^{(1)}$  et  $\Psi^{(2)}$  sont deux

solutions « distinctes » de la même équation géométrique de Dirac :

$$(OP) \cdot \Psi^{(1)} = im_0 c \cdot \Psi^{(1)}, \text{ et : } (OP) \cdot \Psi^{(2)} = im_0 c \cdot \Psi^{(2)}.$$

On a donc :

$$\text{trace } (\gamma_b \cdot \Psi \cdot \Gamma) = \sum_m (\gamma_b \cdot \Psi \cdot \Gamma)_{mm}$$

$$\begin{aligned} \sum_m \sum_n (\gamma_b \cdot \Psi)_{mn} \Gamma_{nm} &= \sum_l \sum_m \sum_n (\gamma_b)_{ml} \Psi_{ln} \Gamma_{nm} \\ &= \sum_m \left[ \sum_n (\Psi_{ln}^{(2)} \Gamma_{nm}) \right] \cdot \left[ \sum_l (\gamma_b)_{ml} \Psi_{ln}^{(1)} \right] \\ &\quad - \sum_m (\tilde{\Psi}^{(2)} \Gamma)_{lm} \cdot (\gamma_b \Psi^{(1)})_{ml} = \tilde{\Psi}^{(2)} \Gamma \gamma_b \Psi^{(1)}. \end{aligned}$$

D'après le choix de la matrice  $\Gamma$  on reconnaît, dans ce résultat, écrite en représentation de Neumann, l'expression :

$$\tilde{\Psi}^{(2)} \cdot C \cdot K \cdot \gamma_b \cdot \Psi^{(1)}.$$

On a donc :

$$\phi_b = \frac{1}{4} \tilde{\Psi}^{(2)} \cdot C \cdot K \cdot \gamma_b \cdot \Psi^{(1)}.$$

Les tenseurs de la théorie du photon, en état d'onde plane, sont donc extraits du produit tensoriel de deux solutions « distinctes »,  $\Psi^{(2)}$  et  $\Psi^{(1)}$ , de l'équation géométrique de Dirac.

En (1), M. L. de Broglie écrit les mêmes  $\phi_b$  en fonction des ondes  $\varphi^{(1)}$  et  $\varphi^{(2)}$  respectivement « complémentaires » de  $\Psi^{(1)}$  et  $\Psi^{(2)}$ . On a donc :

$$\varphi = (\Psi^-)^{\times} = K^{\times} \cdot M^{\times} \cdot \Psi;$$

d'où :

$$\Psi = -M \cdot K \cdot \varphi;$$

et donc :

$$\tilde{\Psi}^{(2)} \cdot C \cdot K \cdot \gamma_b \cdot \Psi^{(1)} = -\tilde{\varphi}^{(2)} \cdot C \cdot M \cdot \gamma_b \cdot \varphi^{(1)} = \tilde{\varphi}^{(2)} \gamma_4 \gamma_b \varphi^{(1)}$$

(en représentation de Neumann).

Par suite des propriétés de symétrie des expressions ci-dessus correspondant aux  $\phi_b$  à 1 ou 2 indices, on peut les écrire :

$$1/2 (\tilde{\varphi}^{(2)} \gamma_4 \gamma_b \varphi^{(1)} - \tilde{\varphi}^{(1)} \gamma_4 \gamma_b \varphi^{(2)});$$

et par suite de l'antisymétrie de celles de ces expressions correspondant aux  $\phi_b$  à 0,3 ou 4 indices, on peut écrire ces dernières :

$$1/2 (\tilde{\varphi}^{(2)} \gamma_4 \gamma_b \varphi^{(1)} - \tilde{\varphi}^{(1)} \gamma_4 \gamma_b \varphi^{(2)}).$$

Ces expressions correspondent aux deux groupes d'opérateurs introduits par M. L. de Broglie en (1). Ch. VII, § 3.

*Première remarque :* Nous avons vu que le bivecteur simple, isotrope, réel, d'une onde E. M. plane, est décomposable univoquement et tensoriellement, en une somme de deux bivecteurs totalement isotropes ; chacun de ces bivecteurs totalement isotrope équivaut à un semi-spineur.

Construire, comme nous venons de le voir cette onde à partir d'un couple de spineurs « distincts », c'est-à-dire à partir de quatre semi-spineurs, c'est introduire des paramètres surabondants dans la détermination de l'onde E. M. On peut voir que ce sont ces paramètres surabondants qui sont à l'origine de l'apparition, à côté des tenseurs maxwelliens que l'on se proposait de construire, de tenseurs « non-maxwelliens » sortes de « résidus de la construction des tenseurs maxwelliens » et dont M. L. de Broglie dit : « Peut-être la théorie du photon sera-t-elle amenée à poser systématiquement (qu'ils) sont toujours nuls. » Cette réduction des paramètres est réalisée dans ce mémoire.

*Deuxième remarque :* La présence de paramètres surabondants rend irréalisable la bi-univocité de la correspondance ondes-corpuscules. Or cette bi-univocité est une condition essentielle d'une équivalence objective éventuelle d'une onde E. M. à un corpuscule ou ensemble déterminé de corpuscules. Elle joue un rôle fondamental dans nos raisonnements ; par contre la mécanique ondulatoire du photon de M. L. de Broglie n'envisage ce problème, ni pour l'onde générale, ni pour les ondes planes ; elle attache des tenseurs électromagnétiques à des spineurs ou produits de spineurs, mais n'envisage pas le problème réciproque.

*Troisième remarque :* Dans ce que M. L. de Broglie appelle : « première tentative insuffisante » ((1), ch VI) les tenseurs E. M. de l'onde plane étaient extraits du carré tensoriel d'un seul spineur ; cela revient, dans la théorie définitive, à poser :  $\Psi^{(1)} = \Psi^{(2)} = \Psi$ . Les tenseurs non-maxwelliens sont alors identiquement nuls. Le nombre des paramètres est réduit. L'une des critiques faites par son auteur à cette première tentative est que la nécessité, pour le photon, de satisfaire à la statistique de Bose-Einstein et non à celle de Fermi-Dirac, interdit de le considérer comme un corpuscule « unique » de Dirac ; d'où la distinction ultérieure des deux spineurs de décomposition. Mais l'étude de la réciprocité de la correspondance entre onde E. M. et spineurs conduit, comme ce mémoire le montre, à faire correspondre, à une onde plane E. M., « deux » spineurs, auxquels les exigences de réalité de l'onde imposent d'être confondus avec leurs inverses et conjugués l'un de l'autre. Les corpuscules que décrivent ces deux spineurs ont même « courant d'univers » mais des « densités de moments électromagnétiques opposés » ; ils sont donc distincts ; et le photon est ainsi mis en correspondance avec un, (ou des), « couple » de corpuscules de Dirac conformément aux exigences statistiques.

*Quatrième remarque :* Dans la construction des tenseurs E. M. à partir des ondes spinorielles du



photon, qui sont complexes, on satisfait à la condition de réalité de ces tenseurs E. M. en les définissant comme le double de la partie réelle des tenseurs complexes obtenus :  $\mathbf{F}_r = \mathbf{F} + \mathbf{F}^*$ .

Cette réduction de tenseurs à leur partie réelle n'est pas commutable avec le calcul tensoriel : il suffit pour le voir de se placer dans l'espace euclidien réel à trois dimensions dans lequel il est immédiat de constater que la partie réelle du produit scalaire de deux vecteurs complexes n'est pas le produit scalaire des parties réelles de ces vecteurs ; un autre exemple est celui du tenseur impulsion-énergie E. M. de la partie réelle d'un champ complexe qui n'est pas la partie réelle du tenseur impulsion-énergie E. M. du champ donné. Du point de vue relativiste l'opération de réduction d'un tenseur complexe à sa partie réelle ne peut être qu'un artifice de calcul.

Par ailleurs le caractère complexe des spineurs corpusculaires ou photoniques est irréductible ; il est responsable de certains caractères essentiels des théories quantiques, par exemple des interférences de probabilités.

Le problème est donc d'assurer une correspondance « de caractère invariant » entre des spineurs « complexes » et certains autres tenseurs « réels ». Nous avons déterminé une telle correspondance dans ce mémoire. On ne peut pas considérer que la correspondance utilisée en théorie du photon pour résoudre ce problème soit satisfaisante car, si la décomposition de l'onde photonique en tenseurs E. M. complexes est invariante, la réduction de ceux-ci à leur partie réelle ne l'est pas.

*Cinquième remarque :* En théorie du photon, la masse au repos de celui-ci est supposée « non nulle ». C'est une hypothèse très importante, longuement discutée dans les ouvrages de M. L. de Broglie. Nous voulons simplement rappeler, à son sujet, une remarque relative aux ondes planes que nous avons faites plus haut (§ 5) et qui nous paraît nous velle : Si  $m_0 \neq 0$ , les  $\Psi^{(1)}$  et  $\Psi^{(2)}$  déterminent le vecteur  $\mathbf{OP}$  des équations géométriques de Dirac auxquelles ils satisfont, alors que, le choix de la fréquence de l'onde E. M. attachée au bivecteur extrait de leur produit devant être arbitraire, ces spineurs ne devraient déterminer que le support du vecteur  $\mathbf{OP}$  ; c'est bien ce qui se produit si la masse au repos des corpuscules correspondant à ces spineurs est nulle :  $m_0 = 0$ , comme cela est impliqué par la correspondance construite dans ce mémoire.

*Sixième remarque :* La densité de spin de chacun des deux types de corpuscules attachés par ce mémoire à une onde E. M. plane est nulle. Cela n'est pas en contradiction avec l'hypothèse habituelle que le spin du photon est égal à 1, car celle-ci équivaut à une propriété des matrices ou opérateurs de spin alors que notre conclusion porte sur les densités. Cette conclusion, pourrait, peut-être, être mise en relation avec la difficulté expérimentale qu'il y a à déceler le spin du photon (3, VI, § 5).

Manuscrit reçu le 14 novembre 1955.

#### BIBLIOGRAPHIE

- [1] DE BROGLIE (L.), Nouvelle théorie de la Lumière (2 volumes).
- [2] DE BROGLIE (L.), Théorie générale des particules à spin.
- [3] DE BROGLIE (L.), Mécanique ondulatoire et théorie quantique des champs.
- [4] DIRAC (P. A. M.), Principes de la mécanique quantique.
- [5] CARTAN (Élie), Leçons sur la théorie des spineurs (2 volumes).
- [6] GIVENS (Wallace), Tensors coordinates of linears spaces. *Ann. math.*, 1937, **38**, 355.
- [7] VELEN (O.), *Proc. Nat. Acad.*, 1933, **19**, 462.
- [8] BRAUER (R.), and WEYL (H.), *Amer. J. math.*, 1935, **57**, 425.
- [9] CORSON (E. M.), Introduction to tensors, spinors, and relativistic wave-equations (London, 1953-1954).
- [10] BADE (W. L.) and JEHLE (Herbert), An introduction to spinors. *Rev. Mod. Physics*, 1953, **25**, 714.
- [11] WHITTAKER, On the relations of the tensor calculus to the spinor calculus. *Proc. Roy. Soc., London*, 1937, **158**, 38.
- [12] COSTA DE BEAUREGARD (O.), *C. R. Acad. Sc.*, 237, p. 1495 ; *C. R. Acad. Sc.*, 239, p. 1357.

ÉTUDE DE  $P_2Zn_3$  CRISTALLISÉ AUX BASSES TEMPÉRATURES

Par J. LAGRENAUDIE,

Laboratoire de Physique de l'École Normale Supérieure, Paris.

**Sommaire.** — L'étude sur  $P_2Zn_3$  cristallisé, à diverses températures, manifeste l'effet de pièges de divers niveaux ; l'intervention de ceux-ci permet de comprendre les effets photoélectriques et conduit à des rendements quantiques plausibles. Une comparaison est faite avec Te, où les pièges sont de faible importance. L'étude a comporté : photoconductivité (en continu et en alternatif), effet photomagnétique, courbes du type « glow curves » et étude du déclin du photocourant.

**Photoconductivité.** — La photoconductivité a été étudiée en continu et en alternatif (225 p/s), avec éclairciment en lumière blanche (lampe à fil W) ou bleue (obtenue par filtre à  $SO_4Cu$ ). Dans les deux cas, la photoconductivité alternative est beaucoup plus faible que la photoconductivité continue ; l'effet en lumière bleue est un peu inférieur seulement à l'effet en lumière blanche, ce qui dénote un très faible rendement quantique pour les photons de  $\lambda$  voisin de  $1\mu$ . Le seuil est à  $1,1\mu$ . Le rapport  $\frac{\Delta C_{\text{blanc}}}{\Delta C_{\text{bleu}}}$  est compris entre 1 et 2 en continu, et 3 environ en alternatif, alors que le rapport entre les nombres de photons incidents (de  $\lambda < 1,1\mu$ ) est de l'ordre de 50, mesuré par photométrie.

On trouve que, par refroidissement, la photoconductivité en alternatif varie peu, dans un rapport inférieur à 10 entre la température ambiante et  $130^\circ K$ , avec tendance, généralement, à augmenter, sans qu'une loi précise se manifeste. Cette constance approximative a lieu en éclairciment blanc ou bleu. Au contraire, en continu, la photoconductivité augmente fortement, dans un rapport qui peut dépasser 10 (entre  $290$  et  $140^\circ K$ ), sur tous les échantillons, en lumière blanche comme en lumière bleue.  $\Delta C$  en lumière blanche varie, sur une large gamme de températures, comme une fonction linéaire de  $\frac{1}{T}$  plutôt que suivant une loi exponentielle. Après extinction de la lumière, le courant revient très lentement à sa valeur d'obscurité, avec constantes de temps de plusieurs minutes dès la température ordinaire.

Ces effets divers peuvent s'expliquer par la présence de pièges, certains profonds, dont beaucoup sont saturés, sous irradiation intense, dès la température ordinaire, et qui fixent un grand nombre de photoporteurs, surtout aux températures basses ; des porteurs de signe opposé en nombre équivalent se trouvent au voisinage, appelés par la charge d'espace, et contribuent à la conductivité. Par refroidissement, le temps de relaxation des pièges, et le nombre de porteurs piégés, augmentent,

ce qui provoque un accroissement de la photoconductivité observée en continu ; au contraire, la photoconductivité alternative ne peut être influencée que par les pièges peu profonds, à temps de rela-

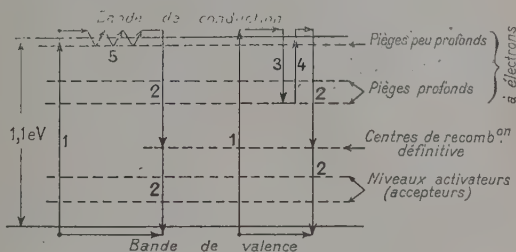


FIG. 1. — Modèle pour  $P_2Zn_3$ . 1. Excitation optique. 2. Recombinaison (par centres appropriés). 3, 4. Échange entre bande et pièges profonds. 5. Échange entre bande et pièges peu profonds.

xation assez faibles pour suivre les variations rapides d'éclairciment. Ceux-ci se manifestent seulement par une augmentation apparente de la durée de vie  $\tau$  et une diminution, dans le même rapport, de la mobilité  $\mu$ , des porteurs libres avec lesquels ils sont en équilibre, le produit  $\mu\tau$  restant constant.  $P_2Zn_3$  étant de type  $p$ , on peut présumer que les pièges principaux fixent les électrons, plutôt que les trous. L'effet de charge d'espace due à porteurs piégés, a été proposé déjà dans d'autres cas. CdS notamment, pour expliquer la grande photoconductivité en continu. Il y a lieu d'envisager ici, dans  $P_2Zn_3$ , un grand nombre de niveaux de diverses profondeurs, avec des temps de relaxation différents, à  $T$  donné ; une étude du photocourant à diverses fréquences et températures, permettrait de voir leur répartition, les seuls actifs, à chaque fréquence, étant ceux dont le temps de relaxation est court devant la période de l'éclaircissement.

Le rapport  $\frac{\Delta C_{\text{cont}}}{\Delta C_{\text{alter. 225p/s}}}$ , en lumière blanche (environ  $10^{17}$  photons/cm<sup>2</sup>-sec), est de l'ordre de 5 à 50, à température ordinaire.



**Étude en flash et « glow curves ».** — Le déclin du photocourant a été observé suivant la méthode classique du flash [3] (lampe à krypton, dont la constante de temps est de 10 à 20  $\mu$ s), à diverses températures, depuis l'ambiante jusqu'à 140° K environ. La courbe de déclin n'est pas une exponentielle rigoureuse, mais se rapproche sensiblement d'une exponentielle avec  $\tau$  de 20 à 100  $\mu$ s (à toutes températures). En outre, on voit apparaître, par refroidissement, une queue exponentielle, dont l'amplitude augmente quand la température s'abaisse, mais dont la constante de temps  $\tau'$  augmente peu par refroidissement et reste voisine de 3 ms. Cette queue est attribuable à la relaxation lente des porteurs fixés en pièges peu profonds. La courbe de déclin complète est une somme des deux courbes. La queue est négligeable à température ordinaire ; les pièges « courts » y sont vidés trop rapidement. La méthode ne permet pas de voir la relaxation à partir des pièges de  $\tau' > 0,1$  seconde, qui semblent les plus importants pour les processus observés en continu.

On a, à cet effet, utilisé une méthode calquée sur celle des « glow curves » de luminescence, et déjà employée pour CdS [4] : après refroidissement (jusqu'à 140° K environ), on illumine fortement, ce qui remplit les pièges, et laisse réchauffer lentement à l'obscurité. La courbe représentant le courant en fonction du temps (ou de la température) présente deux bosses, à températures d'environ 160° K et 180° K, ou 160° K et 200° K (suivant échantillons). On peut l'interpréter simplement comme suit :

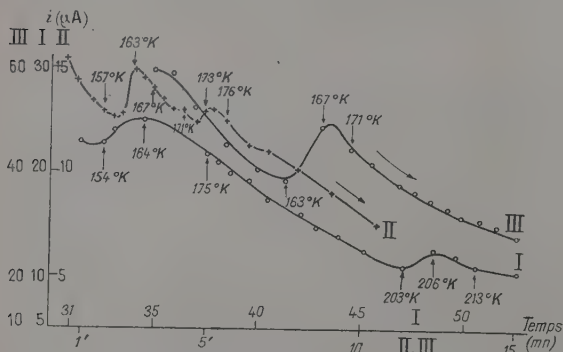


FIG. 2. — Courbes du type « glow curves » de  $i$  en fonction de  $t$  à l'obscurité, après éclaircissement à basse température.

Soient  $N$  la densité de porteurs piégés à l'instant  $t$  (ou température  $T$ ) sur pièges de profondeur  $E$  ; et  $n$  la densité de porteurs libres correspondants, dont la durée de vie  $\tau$  (avant recombinaison définitive) est brève et approximativement constante. On a :

$$dn/dt = -\frac{n}{\tau} + Ns \cdot e^{-E/kT} \quad (1)$$

$Ns e^{-E/kT} = \varphi(t)$  présente une bosse qui se voit

par exemple dans les « glow curves » de thermoluminescence, où on observe un effet optique.

Ici on observe seulement le courant ; les porteurs libres sortant des pièges donnent une contribution proportionnelle à  $n$  et les porteurs de type opposé, appelés par charge d'espace, une contribution proportionnelle à  $N$ , qui décroît lentement. La bosse de courant correspond ainsi à une bosse de  $n$ .

De la relation (1) on tire :

$$n = e^{-t/\tau} \left[ \lambda_0 + \int_0^t e^{t'/\tau} \cdot \varphi(t') dt' \right] \quad (2)$$

et

$$\int_0^t e^{t'/\tau} \varphi(t') dt' = \tau [e^{t/\tau} \varphi(t) - \varphi(0)] - \int_0^t \tau e^{t'/\tau} \varphi'(t') dt'. \quad (3)$$

Le dépiégeage étant lent devant la recombinaison,  $\varphi(t)$  est à variation lente devant  $e^{t/\tau}$  et

$$\varphi'(t)/\varphi(t) = \frac{1}{\tau} \cdot \varepsilon \quad \text{avec} \quad \varepsilon \ll 1. \quad (4)$$

Le dernier terme de (3) s'écrit  $\int_0^t e^{t'/\tau} \cdot \varphi(t') \cdot \varepsilon' dt'$  et peut se négliger. D'où :

$$n = e^{-t/\tau} \{ \lambda_0 + \tau [e^{t/\tau} \varphi(t) - \varphi(0)] \} = \tau \varphi(t) + C^{10} \times e^{-t/\tau}.$$

Le deuxième terme décline très vite (recombinaison directe) et  $n$  varie ensuite comme  $\varphi(t) \equiv N(t) \cdot s \cdot e^{-E/kT}$ .

La bosse de  $n$  correspond ainsi à celle de  $\varphi(t)$ , qui intervient à une température  $T^*$  liée approximativement à la profondeur du piège selon la loi

$$E \approx \frac{T^*}{400} \text{ à } \frac{T^*}{500} \quad (5).$$

Dans le cas étudié ici, on trouve deux niveaux de pièges profonds :  $E \approx 0,32$  eV, et 0,36 à 0,40 eV.

Le courant d'obscurité au début de l'expérience (cristal non éclairé depuis longtemps) est très faible et décroît en même temps que  $T$ , suivant la loi habituelle. Sa variation en fonction de  $T$  indique plusieurs niveaux d'impuretés activatrices (accepteurs), avec énergies d'activation voisines de 0,07 et 0,20 eV.

Une étude de la transmission infrarouge entre 2  $\mu$  et 15  $\mu$ , a été faite, soit sur cristaux soit sur films évaporés. On trouve une bande d'absorption nette, étroite, à 7,2  $\mu$  (0,17 eV) accompagnée de bandes faibles vers 9,5  $\mu$  (0,12 eV) et à 6,7  $\mu$  (0,18 eV) dans le cas de films. Sur cristaux, on voit des bandes à 6,3  $\mu$  (0,20 eV) ; 3,5  $\mu$  (0,33 eV), et 7,6  $\mu$  (0,16 eV), la plus importante étant la première. Les niveaux déterminés optiquement à 0,16 et 0,20 eV sont à rapprocher de ceux à 0,20 eV obtenus par l'étude thermique précédente, et il y a bon accord entre les cristaux et les films. Ces derniers beaucoup plus transparents vers les grands  $\lambda$ , semblent présenter encore une faible bande à 15  $\mu$  (0,08 eV environ). Bien qu'un remplissage des pièges soit possible, la radiation tombant sur le cristal, à l'entrée du spec-

trographe, étant polychromatique jusque dans le visible, l'absorption infra-rouge observée représente plutôt l'excitation optique des activateurs (accepteurs) que la vidange optique des pièges. Celle-ci ne serait observable nettement que par une étude plus complexe (absorption en infra-rouge pur, à  $\lambda > 1,4 \mu$ , sur cristal non irradié depuis longtemps, ou irradié récemment, en lumière visible).

**Effet P. M. E. (Kikoin-Noskov).** — Cet effet, déjà étudié sur  $P_2Zn_3$  à température ordinaire seulement, a montré, dans une étude aux températures inférieures à l'ambiante, une décroissance très rapide et devient insensible dès 260 °K ; l'observation a été faite à fréquence 225 p/s.

Suivant le modèle classique [1] on compare le courant de Kikoin :

$$J = 2\mu'e \cdot 10^{-8} H \cdot D \frac{\alpha \eta L \Phi}{(\sigma + \beta D)(\alpha + \beta)} \quad (5)$$

et la photoconductance

$$\Delta C = 2\mu'e \cdot \frac{L}{h} \eta \Phi \cdot \frac{\sigma + D(\alpha + \beta)}{\beta D(\sigma + \beta D)(\alpha + \beta)} \quad (6)$$

avec :  $\mu' = \frac{\mu_n + \mu_p}{2}$   $D = \frac{kT}{e} \mu$   $\mu$  = mobilité

ambipolaire,

$\alpha$  coefficient d'absorption de la lumière,

$\eta$  rendement quantique,

$\Phi$  flux lumineux (photons  $\text{cm}^2 \cdot \text{sec}$ ),

$\beta^2 = \frac{1}{D\tau}$   $\tau$  = durée de vie (monomoléculaire),

$L, h$  : largeur et hauteur de l'échantillon,

$H$  : champ magnétique,

$\sigma$  : recombinaison en surface.

Les densités de porteurs libres,  $n$  et  $p$ , étant différentes, on a

$$\mu = \frac{\frac{n}{\mu_p} + \frac{p}{\mu_n}}{\frac{n}{\mu_p} + \frac{p}{\mu_n}} \quad (7)$$

et  $\mu$  est très voisin de la mobilité des porteurs mineurs, qui semblent être ici les électrons. On n'a pas à tenir compte des porteurs fixés dans les pièges profonds, l'effet étudié étant à fréquence 225 p/s et le temps de relaxation de ces pièges trop élevé. Mais les porteurs libres de signe opposé appelés par charge d'espace interviennent dans  $\mu$ . Seuls, les porteurs libres des deux types interviennent dans l'effet à 225 p/s, avec une durée de vie monomoléculaire  $\tau$  et des mobilités  $\mu_p$  et  $\mu_n$ . Cependant, les pièges peu profonds, de temps de dépiégeage assez rapide restent constamment en équilibre statistique avec les porteurs libres correspondants (électrons libres dans le modèle proposé ici), et auront pour seul effet apparent de diminuer la mobilité de ces porteurs, et augmenter  $\tau$  dans le même rapport. (Ces pièges sont loin d'être saturés.)

Comme on a vu, le rapport des photoconductivités  $\frac{\Delta C_{\text{blanc}}}{\Delta C_{\text{bleu}}}$ , qui, à  $\Phi$  fixé varie comme  $\frac{D(\alpha + \beta)}{\sigma + D(\alpha + \beta)}$ , est à peu près indépendant de  $T$ . On en conclut que

$$\sigma \ll D(\alpha + \beta) \quad (8)$$

Dans ce cas  $\frac{J}{\Delta C}$  varie, en fonction de  $T$ , comme  $\frac{D\beta}{\alpha + \beta}$ . Expérimentalement,  $\Delta C$  varie très peu et  $J$  décroît très vite quand  $T$  diminue, ce qui s'explique par une diminution de  $D\beta = \sqrt{\frac{D}{\tau}}$  : par effet de piégeage,  $\mu_n$  diminue et  $\tau$  augmente :  $D \propto \frac{kT}{e} \mu_n$  diminue donc (plus vite que  $T$ ), et  $D\beta$  aussi.

Au contraire, en raison de (8),  $\Delta C$  varie comme  $\frac{\eta\mu'}{\beta(\sigma + \beta D)}$  en fonction de  $T$ , soit, si  $\Delta C \approx C^{\text{te}}$  :

$$\sigma \ll D\beta \quad (9)$$

$$\Delta C \approx \frac{\eta\mu'}{\beta^2 D} = \eta\mu'\tau. \quad (10)$$

Si, comme on peut admettre pour  $P_2Zn_3$   $\mu_n \gg \mu_p$ , on aura  $\mu' \approx \frac{1}{2} \mu_n$ , même si  $\mu_n$  est diminué par piégeage ;  $\Delta C$  est très peu variable avec  $T$ , ce qui s'explique par la constance approximative de  $\mu_n \tau$ , qui a même valeur qu'en l'absence totale de piégeage.

Dans les calculs précédents,  $D$ ,  $\mu$  et  $\tau$  ont leur valeur apparente, où est inclus l'effet des pièges.

Le modèle simple qui s'applique au cas où il n'y a pas de pièges, peut être étendu aux effets observés ici, à condition de remplacer dans les formules,  $\mu$  et  $\tau$  réels par les  $\mu$  et  $\tau$  apparents dus à piégeage.

Les faits observés peuvent alors s'exposer quantitativement ainsi :

$\mu$  et  $\tau$  réels sont pratiquement constants en fonction de  $T$  ; de même  $\mu\tau$  réel ou  $\mu\tau$  apparent. De plus,  $\sigma$  est très faible devant  $D\alpha$  ou  $D\beta$ .

Au point de vue numérique, à température ordinaire :

$$\mu_n \sim \frac{4}{10} \quad \tau \sim 10^{-4} \text{ à } 2 \cdot 10^{-5}$$

$$D \sim 10^{-2} \text{ (valeurs apparentes)}$$

et

$$\beta \sim 10^3 \quad \alpha > 10^4 \text{ (en lumière blanche).}$$

Enfin le rendement quantique  $\eta$  est de l'ordre de l'unité en lumière bleue, de 10 % en lumière blanche. Dans celle-ci, les seuls photons très efficaces sont très au-dessus du seuil et très absorbés ( $\alpha$  élevé)



Les valeurs réelles de  $\mu_n$  et  $\tau$  seront donc :

$$\mu_n > \frac{4}{10} \quad \tau < 10^{-4} \text{ (l'essai en flash donne } \tau \text{ apparent).}$$

Quant à  $\mu_n$ , on en a une idée très grossière, à partir de la valeur de la conductivité intrinsèque : le calcul avait indiqué 30 environ ; mais, si on tient compte de la réduction, de la bande interdite par élévation de température, une valeur de  $\mu_n$  ( $\gg \mu_p$ ) de l'ordre de quelques unités seulement, est acceptable.

Le modèle ici proposé avec piégeage des électrons explique que l'effet PME soit visible dans  $P_2Zn_3$ , si on admet  $\mu_n \gg \mu_p$  (les porteurs minoritaires sont les plus rapides), tandis que l'effet Hall, proportionnel à  $\mu_p$ , n'a pu être décelé.

**Comparaison : cas de Te.** — Au cours de la même étude, on a observé l'effet PME et la photoconductance sur des monocristaux clivés, non décapés chimiquement, de Tellure, éclairés en lumière blanche ( $\alpha = \infty$ ), déjà étudiés auparavant à température ordinaire. Ces cristaux ont une résistance faible et pratiquement indépendante de  $T$  ; on a admis, comme approximation :  $D$  (ambipolaire, normalement à l'axe  $c$ )  $\approx 8$  à toutes températures, et  $\eta = 1$  [7].

De  $J$  et  $\Delta C$  en supposant  $\sqrt{D\tau} \ll l$  (épaisseur) on tire  $\tau$  et  $\sigma$ . On trouve que, lorsque  $T$  baisse de l'ambiante jusqu'à 140 °K,  $\tau$  augmente de l'ordre de  $10^{-8}$  à l'ordre de  $10^{-4}$  seconde, sur tous les échantillons, tandis que  $\sigma$  augmente de l'ordre de  $10^6$  à

l'ordre de  $10^6$  à  $10^7$ . Aux températures basses,  $\sqrt{D\tau}$  devenait du même ordre que  $l$  ; on est conduit à admettre dans ces conditions que  $D$  diminue rapidement ce qui suggère un effet de piégeage, et  $\tau \gtrsim 10^{-4}$  seconde ; cette correction d'épaisseur n'a lieu que pour  $T < 190$  °K. L'intervention de pièges, dans le cas du Te, semble négligeable aux températures plus élevées, ce qui s'explique par la bonne cristallisation et la faible bande interdite de Te. L'augmentation de  $\tau$  par refroidissement, trouvée ici, est en bon accord avec des expériences toutes différentes (photoconductivité seule), mais on a admis, par simplicité, un modèle monomoléculaire [6] [7].

**Conclusion.** —  $P_2Zn_3$  où les effets de photoconductivité et PME sont compliqués par des pièges répartis en niveaux très variés, est un bon intermédiaire entre les éléments tétravalents (Si, Ge), où les effets sont plus simples, et des composés comme CdS où les pièges jouent un rôle essentiel. La longueur de diffusion  $y$  est de l'ordre de  $10 \mu$ . à température ordinaire ;  $\tau$  y semble peu variable en fonction de  $T$ , et la recombinaison en surface très faible.

Je remercie M. le Pr Rocard, Directeur du Laboratoire de l'École Normale, et M. Delbord, Chef du Service I. R. T. au C. N. E. T. Je remercie aussi, pour d'utiles discussions, MM. P. Aigrain, F. Gans et D. Curie.

Manuscrit reçu le 6 décembre 1955.

#### BIBLIOGRAPHIE

- [1] AIGRAIN et BULLIARD, *C. R. Acad. Sc.*, 1953, **236**, 595 et 672.
- [2] BULLIARD, *Ann. Physique*, 1954, **9**, 52 ; *Phys. Rev.*, **94**, n° 6, 15.
- [3] TOLSTOI et FEOFILOV, *Izv. Ak. N. SSSR, Fiz.*, 1952, **16**, 59 ; *J. E. T. F.*, 1950, **20**, 769.
- [4] MUSCHEID, *Ann. Physik*, 1953, **13**, 322.
- [5] CURIE (D.), *J. Physique Rad.*, 1955, **16**, 109.
- [6] REDFIELD, Univ. of Pennsylvania, *Quart. Rep.* n° 8, octobre-décembre 1954 et janvier-mars 1955.
- [7] LOFERSKI, *Phys. Rev.*, 1954, **93**, 4, 707.

NOUVELLE DÉTERMINATION DE LA DIFFÉRENCE DES PÉRIODES DE  $^7\text{Be}$  MÉTALLIQUE ET DE  $^7\text{BeF}_2$ Par R. BOUCHEZ <sup>(1)</sup>, J. TOBAILEM, J. ROBERT et R. MUXART, R. MELLET, P. et R. DAUDEL,

Institut du Radium, Laboratoire Curie, Paris.

**Sommaire.** — La différence des périodes radioactives du  $^7\text{Be}$  métallique et du  $^7\text{BeF}_2$  a été remesurée, on a obtenu :

$$\frac{\lambda(\text{Be}) - \lambda(\text{BeF}_2)}{\lambda} = (1,2 \pm 0,1) 10^{-3}.$$

**I. Introduction.** — En 1947, R. Daudel [1] et E. Segre [2] ont signalé indépendamment la possibilité d'une modification de la période radioactive du  $^7\text{Be}$ , sous l'influence de l'ionisation de l'atome.

Des expériences ont été alors entreprises à Paris [3, 4] et à Berkeley [5] afin de mettre en évidence en particulier une différence de période entre le béryllium sous forme métallique et le fluorure de béryllium.

Le groupe de Paris avait d'abord obtenu <sup>(2)</sup> :

$$\frac{\Delta\lambda}{\lambda} \equiv \frac{\lambda(\text{Be}) - \lambda(\text{BeF}_2)}{\lambda} = (6 \pm 1) 10^{-3}$$

$\lambda$  étant la constante radioactive du  $^7\text{Be}$ . Cet effet observé correspondait à environ dix fois la limite de sensibilité de l'appareil ; mais l'estimation quantitative peu précise avait été obtenue à partir d'une activité très faible de  $^7\text{Be}$  ( $\leq 10 \mu\text{g}$  équivalent de radium). Remarquons que cette première expérience avait seulement pour objet la mise en évidence qualitative du phénomène.

Le groupe de Berkeley obtenait en 1949, une valeur beaucoup plus précise :

$$\frac{\Delta\lambda}{\lambda} = (0,84 \pm 0,10) \cdot 10^{-3} \quad [5, 7]$$

Plus récemment, en 1953, Kraushaar, Wilson et Bainbridge [8] ont repris ces expériences et ont obtenu :

$$\frac{\Delta\lambda}{\lambda} = (0,74 \pm 0,05) 10^{-3}$$

Désirant étudier la différence de période entre le  $^7\text{Be}$  solide et le  $^7\text{Be}$  gazeux <sup>(3)</sup>, il nous a semblé

<sup>(1)</sup> Actuellement : Laboratoire de Physique nucléaire, Institut Fourier, Université de Grenoble.

<sup>(2)</sup> La première valeur publiée [3, 4]

$$7 \cdot 10^{-3} < \frac{\Delta\lambda}{\lambda} < 13 \cdot 10^{-3}$$

a été modifiée <sup>(6)</sup> par suite d'une erreur dans le calcul du rapport  $\frac{\Delta I}{I_0}$ .

<sup>(3)</sup> En raison des difficultés techniques rencontrées pour faire cette comparaison entre le métal à l'état solide et à l'état gazeux, nous avons entrepris des recherches pour inclure l'atome de  $^7\text{Be}$  dans une molécule organique simple.

indispensable de faire préalablement une nouvelle détermination de la différence des périodes entre  $^7\text{Be}$  métallique et  $^7\text{BeF}_2$ . Cette mesure a été effectuée par une méthode d'ionisation différentielle analogue à celle utilisée précédemment mais à l'aide de nouvelles chambres beaucoup plus sensibles et avec des sources radioactives plus intenses. Des précautions particulières ont été prises dans la préparation de ces sources qui ont été étudiées à l'aide d'un spectromètre à scintillations.

**II. Préparation des sources.** — Le béryllium radioactif a été obtenu par bombardement dans le synchro-cyclotron de Harwell [9] par des protons de 160 MeV d'une cible de  $^{12}\text{C}$  sous forme de graphite extrêmement pur <sup>(4)</sup>.

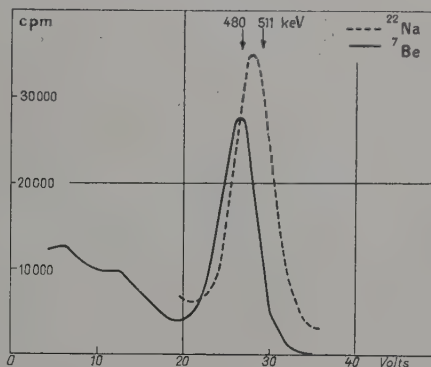


FIG. 1.

Le  $^7\text{Be}$  produit est d'abord extrait du graphite sous forme de  $^7\text{BeO}$  : la cible, finement pulvérisée, sur laquelle est déposée de l'oxyde de béryllium comme entraîneur, est brûlée en atmosphère oxydante [10]. Le  $^7\text{BeO}$  ainsi obtenu a été examiné au spectromètre  $\gamma$  à scintillations ; le spectrogramme (fig. 1) indique seulement le pic photoélectrique de 480 keV de  $^7\text{Be}$ .

Le  $^7\text{BeO}$  est ensuite transformé en  $^7\text{Be}$  métallique

<sup>(4)</sup> Cette cible, utilisée pour les expériences de polarisation de protons, nous a été obligeamment fournie par B. Rose que nous remercions vivement.



par la méthode décrite dans un précédent article [10] ; le métal est divisé en deux portions équivalentes : l'une est la source métallique (Source M), l'autre est transformée en fluorure (Source F) par action d'une solution de fluorure acide d'ammonium, suivie d'une décomposition ; le fluorure obtenu par cette méthode se présente sous forme amorphe <sup>(5)</sup>. Les deux sources obtenues ont été placées dans des nacelles en platine et noyées dans de la paraffine purifiée. Elles produisaient dans la chambre d'ionisation le même courant que 200  $\mu\text{C}$  de radium (filtrés par 2 mm de plomb).

**III. Appareillage de mesures.** — Les conditions expérimentales actuelles sont différentes de celles de 1948 ; outre une intensité plus grande du  $^7\text{Be}$  (200 au lieu de 40  $\mu\text{g}$  équivalent Ra), l'appareil se distingue principalement du dispositif antérieur par une meilleure sensibilité des chambres (angle solide sensiblement égal à  $4\pi$  au lieu de  $4\pi/10$  ; volume 6 l au lieu de 1,5 l ; sensibilité en volts : 13 000 mm/Volt au lieu de 1 500 mm/Volt pour une stabilité comparable). Par contre, ces dernières expériences ont été effectuées dans un laboratoire moins favorable (mouvement propre plus important, 30 paires d'ions/cm<sup>2</sup>/sec au lieu de 3 ; perturbations électriques extérieures obligeant d'annuler des séries de mesures).

Les deux chambres d'ionisation <sup>(6)</sup>, construites aussi identiques que possible, sont montées en opposition, les électrodes collectrices reliées entre elles sont connectées à la grille d'une lampe électromètre ; le circuit électrométrique est à compensation automatique des variations du courant de chauffage du filament de la lampe. Les chambres sont étanches, remplies d'air à la pression de 1 kg/cm<sup>2</sup>. La lampe électromètre placée dans une enceinte vidée est protégée des perturbations électriques et magnétiques par un double blindage en laiton et en mumétal.

Les caractéristiques du montage sont les suivantes :

Sensibilité des chambres

$$\simeq 7 \cdot 10^{-14} \text{ A}/\mu\text{C Ra}$$

(rayonnement du Radium filtré par 2 mm de plomb)

Sensibilité en Volts du dispositif

$$\simeq 7,7 \cdot 10^{-5} \text{ V/mm (13 000 mm/V)}$$

<sup>(5)</sup> La formule moléculaire du fluorure a été contrôlée par analyse spectrophotométrique pour le fluor et gravimétrique pour le beryllium. La méthode d'obtention du fluorure et la détermination de sa formule moléculaire fait l'objet d'un Diplôme d'Études Supérieures par Robert MELLET.

<sup>(6)</sup> Une description détaillée de ces chambres sera donnée dans un article ultérieur.

Constante de temps :

$$CR = 40 \text{ min (C = 965 pF ; R = } 2,5 \cdot 10^{12} \Omega)$$

Fluctuation du mouvement propre différentiel

$$\simeq 10^{-16} \text{ A.}$$

**IV. Résultats expérimentaux.** — a) **MESURE DE  $\Delta\lambda$**  : A l'instant initial, les sources  $^7\text{Be}$  métal et  $^7\text{BeF}_2$  sont placées de manière à produire le même courant d'ionisation  $I_0$  dans les deux chambres ; au temps  $t$ , la différence des courants est :  $i = I_0 \cdot \Delta\lambda \cdot t \cdot e^{-\lambda t}$ . Pour mesurer le courant différentiel  $i$ , la méthode de déviation a été utilisée. Comme dans les expériences précédentes, on a observé en libérant la grille, un déplacement en fonction du temps du spot lumineux du galvanomètre dans un sens correspondant à une augmentation apparente de l'intensité de la source  $^7\text{BeF}_2$ ,

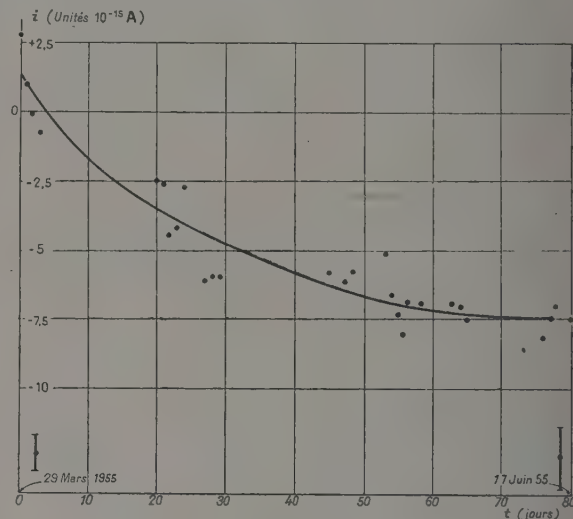


FIG. 2.

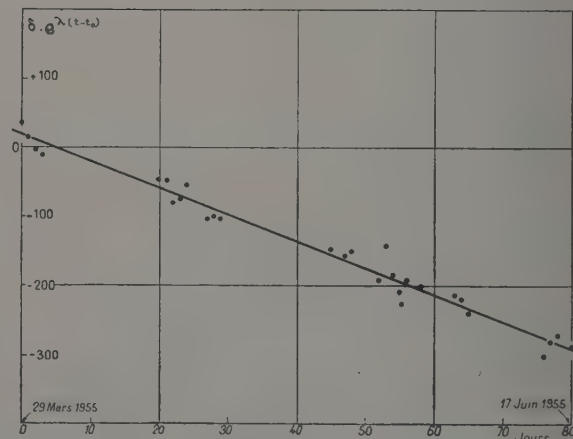


FIG. 3.

c'est-à-dire à une période plus grande du fluorure. Ce déplacement  $\delta$  est relié au courant  $i$  par un étalonnage de l'échelle galvanométrique ( $1 \text{ mm} \simeq 4,610 \cdot 10^{-17} \text{ A}$ ). La valeur du courant total  $I_0$  mesuré par la méthode de Townsend est  $I_0 \simeq 2,76 \cdot 10^{-12} \text{ A}$ .

L'expérience a été poursuivie pendant 80 jours et 29 points expérimentaux ont pu être déterminés. Les figures 2 et 3 représentent les courbes  $\delta = f(t)$  et  $\delta e^{\lambda t}$ . L'analyse des points expérimentaux a été faite par la méthode des moindres carrés. La connaissance de la pente  $a$  de la droite de la figure 3 permet de calculer

$$\Delta\lambda = \frac{a}{I_0} \quad (a \simeq 5,77 \text{ mm/jour}).$$

Les fluctuations statistiques dues aux sources et au mouvement propre représentent environ 20 mm, soit  $10^{-15} \text{ A}$ .

b) MESURE DE  $\lambda$  : La période de  $^7\text{Be}$  a également été remesurée (fig. 4) en utilisant la méthode d'ionisation différentielle [11]. On a obtenu :  $T = (53,0 \pm 0,4) \text{ jours}$ , soit

$$\lambda = (1,307 \pm 0,010) \cdot 10^{-2} \text{ jour}^{-1}.$$

On a donc pour  $\Delta\lambda/\lambda$  la valeur :

$$\Delta\lambda/\lambda = (1,2 \pm 0,1) \cdot 10^{-3}.$$

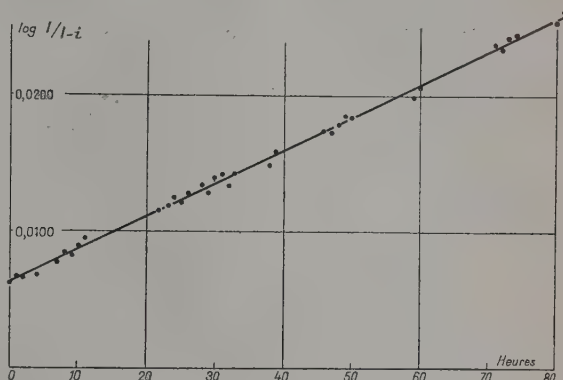


FIG. 4.

On a résumé dans le tableau ci-dessous les valeurs expérimentales obtenues pour  $\Delta\lambda/\lambda$ .

AUTEURS	INTENSITÉ <sup>(1)</sup> DES SOURCES EN $\mu\text{g}$ ÉQUIVAL.	FORMES CHIMIQUES COMPARÉES $\lambda(^7\text{Be}) - \lambda(^7\text{BeF}_2)$	$\frac{\Delta\lambda}{\lambda} \times 10^3$	T JOURS	RÉFÉRENCES
BOUCHEZ et al. ....	40	$^7\text{Be}$ métal + traces de sodium/fluorure amorphe	$\simeq 6$	$54,3 \pm 0,5$	3,4
LEININGER et al. ....	317	$^7\text{Be}$ métal/fluorure cristallisé	$0,84 \pm 0,10$	$52,93 \pm 0,22$	5,7
KRAUSHAAR et al. ...	71	$^7\text{Be}$ métal/fluorure cristallisé	$0,74 \pm 0,05$	$53,61 \pm 0,17$	8
Présent travail ....	200	$^7\text{Be}$ métal/fluorure amorphe	$1,2 \pm 0,1$	$53,0 \pm 0,4$	—

<sup>(1)</sup> Obtenue au début des expériences.

La valeur obtenue dans cette nouvelle détermination est sensiblement en accord avec les valeurs de Leininger et al. [5] et Kraushaar et al. [8] ; signalons que le fluorure utilisé par ces auteurs était cristallisé tandis que dans notre expérience il se trouvait à l'état amorphe.

Notre valeur actuelle s'écarte notablement de celle que nous avons obtenue en 1948 ( $\simeq 6 \cdot 10^{-3}$ ). Cette première valeur assez approximative avait

été déterminée avec des sources de très faible intensité. Il subsiste évidemment la possibilité d'une erreur systématique dans l'estimation quantitative de l'effet que nous avons observé ; toutefois la différence est peut-être en partie imputable à la présence de sodium dans la source de béryllium utilisée.

Manuscrit reçu le 23 décembre 1955.

#### BIBLIOGRAPHIE

- [1] DAUDEL (R.), *La revue scientifique*, 1947, **162**, 3266.
- [2] SEGRE (E.), *Phys. Rev.*, 1947, **71**, 274.
- [3] BOUCHEZ (R.), DAUDEL (P. et R.), MUXART (R.), *C. R. Acad. Sc.*, 1948, **227**, 525.
- [4] BOUCHEZ (R.), DAUDEL (P. et R.), MUXART (R.), ROGOZINSKI (A.), *J. Physique Rad.*, 1949, **10**, 201.
- [5] LEININGER (R. F.), SEGRÈ (E.), WIEGAND (C.), *Phys. Rev.*, 1949, **76**, 897.
- [6] BOUCHEZ (R.), *Thèse*, Paris, 1950.
- [7] LEININGER (R. F.), SEGRÈ (E.), WIEGAND (C.), *Phys. Rev.*, 1951, **81**, 280.
- [8] KRAUSHAAR (J. J.), WILSON (E. D.), BAINBRIDGE (K. T.), *Phys. Rev.*, 1953, **90**, 610.
- [9] DAWSON (J. M.), RANDLE (T. C.), *Nature*, 1950, **235**, 4214.
- [10] MELLET (R.), DAUDEL (P.), MUXART (R.), *Bull. Soc. Chim.*, 1955, 560.
- [11] TOBAILEM (J.), *Ann. Physique*, 1955, **10**, 783.



## EXPOSÉ ET MISE AU POINT BIBLIOGRAPHIQUE

LA RÉSONANCE QUADRIPOLAIRE NUCLÉAIRE <sup>(1)</sup>

Par le Professeur H. KOPFERMANN,  
Université de Heidelberg.

**Sommaire.** — Après avoir rappelé les méthodes qui donnent des informations sur le moment électrique quadripolaire des noyaux atomiques (structure hyperfine des spectres optiques, structure des raies hertziennes du domaine centimétrique, structure des raies de résonances paramagnétiques électroniques et nucléaires) l'auteur expose la méthode de la résonance nucléaire quadripolaire pure découverte en 1949 par Dehmelt et Kruger à Göttingen. L'exposé du principe de la méthode et des techniques expérimentales est suivi d'une revue des résultats obtenus depuis l'application de cette nouvelle méthode.

Il existe, pour déterminer les moments quadripolaires des noyaux atomiques, une série de méthodes qui reposent toutes sur ce fait qu'on mesure l'interaction du moment quadripolaire nucléaire électrique  $eQ$  avec le champ électrique non uniforme qui est produit à l'endroit du noyau par les charges environnantes. Si l'on désigne le potentiel de ce champ par  $\varphi(0)$  et sa deuxième dérivée par rapport à  $z$  par  $\varphi_{zz}(0)$ , on détermine avec ces méthodes ce qu'on appelle la constante de couplage quadripolaire  $eQ\varphi_{zz}(0)$ , en supposant que le champ électrique présente une symétrie de rotation autour de l'axe des  $z$ .

Comme dans le cas des atomes libres l'interaction quadripolaire ne produit qu'un écart généralement faible des termes de la structure hyperfine par rapport à la règle des intervalles, l'effet est souvent si faible qu'il ne peut être déterminé qu'avec des méthodes précises (jets atomiques). Ceci s'applique surtout aux noyaux légers. Dans le cas des noyaux lourds, l'étude interférométrique des lignes du spectre situées dans la région visible et dans l'ultra-violet suffit pour faire des mesures de  $Q$ .

Une autre méthode pour obtenir des renseignements sur les valeurs  $Q$  consiste dans l'étude de la structure hyperfine des lignes de rotation des molécules libres dans le domaine des micro-ondes. Là, la décomposition suffit pour obtenir la constante de couplage quadripolaire par la faible séparation des termes de rotation qui provient de l'interaction quadripolaire. Mais il s'agit ici également d'évaluer un effet du deuxième ordre qui se superpose à un effet du premier ordre.

Quand on utilise ce qu'on appelle la méthode de résonance quadripolaire, on mesure directement la constante de couplage quadripolaire. On a besoin pour cela d'un échantillon cristallin qui est constitué de molécules diamagnétiques, dont les noyaux présentent un moment quadripolaire et dans le voisinage desquelles il y a un gradient de champ électrique  $\varphi_{zz}(0) \neq 0$ . En l'absence d'un champ magnétique quelconque extérieur ou intérieur, le couplage d'énergie provient seulement de l'interaction du moment quadripolaire du noyau  $Q$  avec le champ électrique non

uniforme à l'endroit du noyau, qui est produit par les charges du voisinage. Si l'on prend pour axe des  $z$  d'un système de coordonnées cartésiennes l'axe de symétrie du champ électrique, le noyau qui présente un moment quadripolaire électrique prend, pour parler d'une manière classique, un mouvement de précession autour de l'axe des  $z$ . Si l'angle entre l'axe des  $z$  et l'axe de rotation du noyau quadripolaire est désigné par  $\delta$ , l'énergie du quadripôle dans le champ électrique non uniforme est, d'après les lois de l'électrodynamique classique :

$$E = \frac{eQ\varphi_{zz}(0)}{4} \left( \frac{3}{2} \cos^2 \delta - \frac{1}{2} \right) \quad (1)$$

Du point de vue de la mécanique quantique, il faut remplacer (1) par :

$$E = \frac{eQ\varphi_{zz}(0)}{4} \times \frac{3m_I^2 - I(I+1)}{I(2I-1)} \quad (1a)$$

où  $m_I$  est la composante du spin  $I$  du noyau dans la direction de l'axe de symétrie du champ électrique. Les états d'énergie (1a) concernant  $\pm m_I$  sont dégénérés. Il n'y a que deux états pour  $I = 3/2$ , un avec  $m_I = \pm 3/2$ , un avec  $m_I = \pm 1/2$ ; il y a 3 états pour  $I = 5/2$  avec  $m_I = \pm 5/2, \pm 3/2$ , et  $\pm 1/2$ , etc. (voir fig. 1).

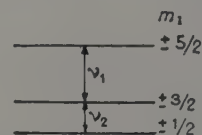


FIG. 1. — Schéma des termes de la résonance quadripolaire et des transitions de la résonance quadripolaire  $\Delta m_I$  pour  $I = 5/2$ .

On calcule facilement par (1a) que, lorsque  $I$  est demi-entier, les différences d'énergie des états sont entre elles comme 1 : 2 : 3 .... Ceci ne s'applique d'ailleurs que pour une symétrie de rotation rigoureuse du champ électrique.

Les transitions  $\Delta m_I = 1$  entre ces états, qui ont le caractère d'un rayonnement dipolaire magnétique,

<sup>(1)</sup> Conférence faite à la Société Française de Physique, le 8 juin 1955.

indiquent un spectre très simple, à savoir une fréquence unique pour  $I = 3/2$ , deux fréquences pour  $I = 5/2$ , etc. Si l'on fait l'hypothèse justifiée que  $\varphi_{zz}(0)$  dans les cristaux des molécules est à peu près le même que dans les molécules libres et si l'on admet des valeurs de  $Q$  de l'ordre de grandeur de  $10^{-25}$  cm<sup>2</sup> on prévoit des fréquences quadripolaires de l'ordre de grandeur de :

$$10^8 \text{ à } 10^9 \text{ Hz.}$$

Les transitions spontanées peuvent être négligées à cause de la petitesse des moments des noyaux et des fréquences de transition. Mais on peut induire des transitions par un champ magnétique de haute fréquence qui agit sur l'échantillon, si sa fréquence vient en résonance avec la fréquence de transition.

La probabilité de transition induite est presque la même que dans le cas d'une résonance nucléaire magnétique. Mais, tandis que, dans une expérience de Bloch-Purcell seule la composante circulaire du champ magnétique polarisé linéaire qui tourne dans le même sens que la fréquence de Larmor induit des passages, les deux composantes circulaires agissent sur le noyau dans l'expérience de la résonance quadripolaire.

On se rend compte de ceci d'une manière simple d'après l'image classique suivante : Dans un champ électrique non uniforme un moment  $D$  qu'on peut calculer par l'énergie (1) agit sur le gyroscope nucléaire. On a :

$$D = \frac{dE}{d\delta} = \frac{3}{4} eQ \varphi_{zz}(0) \cos \delta \sin \delta = \frac{dP}{dt} \quad (2)$$

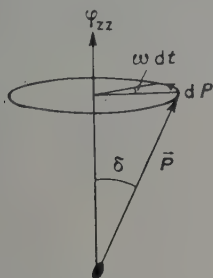


FIG. 2. — Schéma servant au calcul de la fréquence de précession d'un gyroscope nucléaire avec le moment cinétique  $P$  et le moment quadripolaire  $eQ$  dans le champ électrique non uniforme de gradient  $\varphi_{zz}(0)$ .

si  $P$  est le moment cinétique du gyroscope nucléaire. On lit sur la figure 2 :

$$dP = \omega dt P \sin \delta. \quad (3)$$

$\omega dt$  représente l'angle de rotation que  $P$  parcourt pendant le temps  $dt$ . On tire de (2) et (3) la valeur de la fréquence angulaire de la précession :

$$\omega = \frac{\frac{3}{4} eQ \varphi_{zz}(0)}{P} \cos \delta. \quad (4)$$

La fréquence de précession du noyau dans le champ électrique non uniforme dépend donc de l'angle  $\delta$  contrairement à la précession de Larmor du noyau dans le champ magnétique homogène ce qui a pour conséquence que la moitié des noyaux dans l'état  $\pm m_I$

exécutent leur mouvement de précession dans le sens des aiguilles d'une montre et l'autre moitié en sens inverse des aiguilles d'une montre. Dans le cas de la résonance les deux composantes circulaires du champ de haute fréquence polarisé linéairement peuvent donc agir sur les noyaux.

Quand le champ magnétique de haute fréquence oscille perpendiculairement à l'axe des  $z$ , ses deux composantes produisent dans le cas de la résonance des moments magnétiques tournant en sens inverse et avec des phases telles qu'il en résulte comme superposition une aimantation polarisée linéairement de tout l'échantillon. Cette aimantation macroscopique produit une tension mesurable dans une bobine d'induction, tout à fait comme dans une expérience d'induction avec noyau magnétique.

Au point de vue du diagramme de l'énergie, des transitions  $\Delta m_I = \pm 1$  entre les états particuliers du spectre des termes quadripolaires sont induites et, comme la distribution des termes comporte une répartition de Boltzmann avant le rayonnement, il y a plus de transitions de bas en haut que de haut en bas. Par suite, la population de chaque terme inférieur est diminuée et celle de chaque terme supérieur est augmentée. L'excédent d'énergie qui est ainsi produit dans le système de spins est compensé par un flux d'énergie du système de spins au réseau cristallin et c'est cette perte d'énergie qu'on peut facilement détecter dans le circuit à haute fréquence.

Prenons maintenant comme exemple un cristal constitué par des molécules  $\text{Cl}_2$ . Dans cette molécule on a une liaison  $p$  covalente pure. A chacun des deux atomes  $\text{Cl}$  il manque dans l'enveloppe extérieure un électron à l'état  $p$  (trou  $p$ ) et ceci avec le nombre quantique magnétique  $m = 0$ . Les spins des deux électrons liés sont antiparallèles l'un à l'autre. Il n'y a donc pas de champ magnétique à l'endroit du noyau et par conséquent, il n'y a pas non plus de structure magnétique hyperfine. Mais il y a, à l'endroit du noyau, un champ électrique non uniforme à symétrie de révolution, produit pratiquement seulement par la distribution des charges du trou  $p$  dans chaque atome, ce qui détermine le couplage quadripolaire.

Le spin du noyau des deux isotopes du chlore est  $I = \frac{3}{2}$ . Comme ils ont des moments quadripolaires différents, on prévoit deux fréquences, une pour chaque isotope. On a observé les fréquences de 54, 248 Mhz pour  $\text{Cl}^{35}$  et de 42, 751 Mhz pour  $\text{Cl}^{37}$ . D'après (1, a) on obtient pour  $I = \frac{3}{2}$  la fréquence de transition :

$$\nu = \frac{eQ \varphi_{zz}(0)}{2h}. \quad (5)$$

Comme il s'agit, dans le cas de la molécule  $\text{Cl}_2$ , d'une liaison purement covalente, on peut calculer  $\varphi_{zz}(0)$  avec une bonne approximation, en sorte qu'on peut obtenir à l'aide des fréquences quadripolaires mesurées (5), pour  $\text{Cl}^{35}$  ou  $\text{Cl}^{37}$  une valeur de  $Q$  qui concorde parfaitement avec les mesures de la structure hyperfine sur les atomes de chlore libre. Il est d'ailleurs nécessaire d'étudier l'échantillon à des températures très basses. Pour une température plus élevée les fréquences sont déplacées vers des valeurs plus petites, parce que les oscillations des molécules dans le réseau diminuent le gradient du champ électrique.



Si au contraire, on utilise des corps composés comme  $\text{Cl CH}_3$ , le calcul de  $\varphi_{\text{ms}}(0)$  devient un peu problématique, parce que dans un cristal de ce genre on a un mélange de liaison covalente et ionique qu'on ne peut déterminer que d'une manière approximative. Dans la liaison ionique les atomes de la molécule ont la constitution des gaz rares ; la distribution des charges des électrons présente une symétrie sphérique ; les atomes ne contribuent donc en rien au gradient du champ dans cet état de liaison, si l'on fait abstraction de la polarisation.

Dans les limites de la précision des mesures le rapport des fréquences quadripolaires des deux isotopes du chlore dans les deux genres de molécules est le même, ce qui est compréhensible quand on tient compte de ce que les deux isotopes présentent très exactement la même répartition de charges électroniques dans la molécule et, par conséquent, aussi le même gradient de champ dans la même molécule. Ce rapport de fréquences est donc identique au rapport des valeurs  $Q$  des isotopes.

Pour mesurer les fréquences quadripolaires dans le cristal, on peut utiliser un pont de haute fréquence d'après Purcell, Dehmelt et Krüger [1], qui ont trouvé pour la première fois dans notre laboratoire les fréquences quadripolaires du noyau de chlore dans le dichloréthylène, ont utilisé comme appareil de démonstration un oscillateur à super-réaction. On peut décrire le fonctionnement de ce dispositif de la manière suivante : On fait osciller et on amortit périodiquement un circuit oscillant couplé réactivement, dont la fréquence est accordée sur une des fréquences de passage du spectre quadripolaire, par un changement du point de

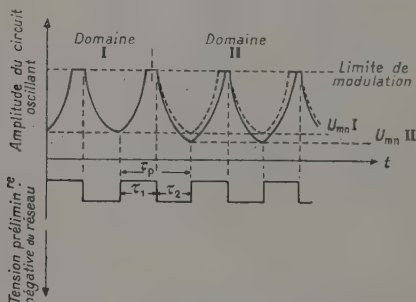


FIG. 3. — Processus des oscillations dans le procédé de la superréaction. Domaine I hors des limites de la résonance. Domaine II dans le cas de la résonance.

fonctionnement du tube. L'amplitude maximum des oscillations est limitée par le domaine de la modulation de la caractéristique du tube ; le maximum des oscillations est de cent à mille fois plus grand que la tension de bruit. On obtient un schéma des oscillations, représenté sur la figure 3. La ligne en trait plein est l'enveloppe des oscillations à haute fréquence. La fréquence auxiliaire utilisée en réalité n'a pas l'allure rectangulaire admise dans la figure 3 par raison de simplicité, mais elle est sinusoïdale, ce qui ne change pas essentiellement les conditions. Dans les intervalles de temps  $\tau_1$  les oscillations du circuit émetteur augmentent, dans les intervalles de temps  $\tau_2$  elles s'amortissent.

Le spectre des fréquences de Fourier de ce processus d'oscillations contient, outre la fréquence porteuse  $\omega_0$ , une série de fréquences latérales sur une distance  $n \omega_P$  de  $\omega_0$  (voir fig. 4). Pour irradier avec succès l'échantillon qui se trouve généralement sous forme de matière polycristalline dans la bobine du circuit

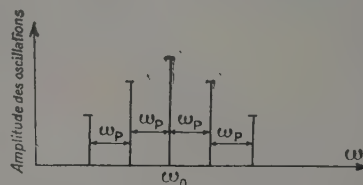


FIG. 4. — Le spectre des fréquences du processus des oscillations de la figure 3.

$\omega_0$  = fréquence porteuse.  
 $\omega_P$  = fréquence auxiliaire.

oscillant, il faut choisir la fréquence auxiliaire  $\omega_P$  de manière qu'elle soit plus grande que la largeur de raie du signal du noyau. Quand une des fréquences de Fourier tombe sur la fréquence de résonance du noyau, elle produit l'aimantation décrite du système, ce qui donne lieu à une tension d'induction supplémentaire dans la bobine. Par suite, de celle-ci, l'amplitude du circuit est diminuée. Dans l'ensemble, dans le cas du rayonnement de résonance, le schéma des oscillations varie de la manière qui est représentée dans le domaine II de la figure 3. La tension moyenne redressée du circuit est donc plus petite dans le cas de la résonance qu'en dehors de la résonance. On peut rendre ce phénomène visible sur l'écran d'un oscilloscope cathodique à la manière ordinaire sous forme de signal nucléaire, si l'on module la fréquence du circuit oscillant avec 50 hertz environ.

Pour déterminer si on irradie avec  $\omega_0$  ou avec une fréquence latérale, il faut un peu modifier la fréquence auxiliaire. Par suite, on obtient un déplacement de toutes les fréquences en s'éloignant de  $\omega_0$ .

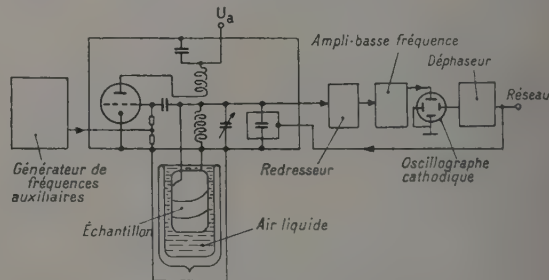


FIG. 5. — Diagramme d'ensemble du spectrographe de résonance quadripolaire.

On peut facilement répondre à la question de savoir si un signal est un signal nucléaire ou un signal parasite par l'application d'un champ magnétique statique faible à l'échantillon. Un signal nucléaire sera élargi par un champ magnétique extérieur comme cela est décrit ci-dessous.

On a reproduit sur la figure 5 le diagramme d'ensemble du spectrographe à résonance quadripolaire.

On peut obtenir une amélioration considérable du

signal en utilisant un « lock-in-detector » qui enregistre non pas le signal lui-même, mais sa dérivée.

Nous allons étudier avec un peu plus de détails les résultats de cette méthode.

Le tableau I indique quelques mesures faites sur des noyaux avec  $I = 3/2$ . Des échantillons avec les deux molécules dont les atomes de chlore font partie donnent des résultats conformes à ce qui a été dit plus haut : Les

TABLEAU I  
RÉSULTATS DES MESURES SUR DES NOYAUX AVEC  $I = 3/2$ .

ÉCHAN- TILLON	ISO- TOPE	$I$	TEMP. DES ÉCHANT. EN DEGRÉS	FRÉQUENCE DE TRANSITION $\nu$ EN MÉGAHERTZ	$\nu_1/\nu_2$	$e Q \Phi_{zz}(0) / h$ EN MÉGAHERTZ	CRISTAL	ATOME OU MOLECULE LIBRE
—	—	—	—	—	—	—	—	—
Cl <sub>2</sub>	35	3/2	77	54,248	1,2688	109,0		109,746
	37	3/2		42,751				
ClCH <sub>3</sub>	35	3/2	77	34,029	1,2688	68,1		75,13
	37	3/2		26,820				
Br <sub>2</sub>	79	3/2	83	382,43	1,1970	765		
	81	3/2		319,46				
BrCH <sub>3</sub>	79	3/2	83	264,45	1,1970	529		577,0
	81	3/2		220,91				

fréquences quadripolaires des molécules Cl<sub>2</sub> ont des valeurs plus grandes que celles de Cl CH<sub>3</sub>, ce qui, comme cela a déjà été dit, est déterminé par le type de liaison chimique. Le rapport des fréquences quadripolaires pour les deux isotopes du chlore est cependant le même dans les deux genres de molécules. Les molécules de brome se comportent de la même manière.

Le rapport des fréquences quadripolaires pour de isotopes de même spin  $I$ , c'est-à-dire, aussi le rapport de leurs valeurs  $Q$ , est comparé dans le tableau II avec les résultats d'autres méthodes. Sans aucun doute les résultats de la méthode de résonance quadripolaire relativement au rapport des fréquences quadripolaires sont les plus sûres.

TABLEAU II

COMPARAISON DU RAPPORT DES FRÉQUENCES QUADRIPOLAIRES DANS LE CAS D'ISOTOPES AVEC MÊME VALEUR  $I$

RAPPORT	JET ATOMIQUE	RAIES DE ROTA- TION DES MOLÉ- CULES	SPECTRE QUADRIPOLAIRE DES CRISTAUX
—	—	—	—
$Q^{35}\text{Cl}/Q^{37}\text{Cl}$	$1,2686 \pm 0,0004$	$1,2961 \pm 0,0003$	$1,2688 \pm 0,0002$
$Q^{79}\text{Br}/Q^{81}\text{Br}$	—	$1,197 \pm 0,001$	$1,1970 \pm 0,0002$
$Q^{123}\text{Sb}/Q^{121}\text{Sb}$	—	$1,263 \pm 0,01$	$1,2751 \pm 0,0002$

Quand le spin  $I$  est supérieur à  $3/2$ , on obtient plusieurs fréquences pour un noyau donné. Dans le tableau III, les mesures relatives aux noyaux d'iode et d'antimoine sont indiquées. Le noyau stable de  $^{127}\text{I}$  a un spin  $I = 5/2$ . Par conséquent, on observe dans un cristal de Sn I<sub>4</sub> deux fréquences quadripolaires de l'iode avec un rapport de fréquences 2 : 1,

résultat qui démontre la symétrie de rotation du champ électrique à l'emplacement des noyaux d'iode. Au contraire, on constate dans le cristal de Sb Cl<sub>3</sub>, pour les deux isotopes de Sb, des écarts à la symétrie de révolution du champ électrique. En effet on trouve les écarts des rapports des fréquences quadripolaires du rapport 2 : 1 ou 3 : 2 : 1. On peut exprimer ces écarts

TABLEAU III  
RÉSULTATS DES MESURES SUR DES NOYAUX AVEC  $I > 3/2$

NOYAU	$I$	CRISTAL	$\nu$ 1/2-3/2 EN MÉGAHERTZ	$\nu$ 3/2-5/2 EN MÉGAHERTZ	$\nu$ 5/2-7/2 EN MÉGAHERTZ	$\frac{\Phi_{xx} - \Phi_{yy}}{\Phi_{zz}}$
—	—	—	—	—	—	—
$^{127}\text{I}$	5/2	SnI <sub>4</sub>	204,50	409,00	—	0
$^{121}\text{Sb}$	5/2	SbCl <sub>3</sub>	59,709	114,20	—	0,188
$^{123}\text{Sb}$	7/2	SbCl <sub>3</sub>	39,094	68,648	104,46	0,188



du gradient de champ à la symétrie de révolution à l'aide du rapport

$$\left| \frac{\varphi_{xx}(0) - \varphi_{yy}(0)}{\varphi_{zz}(0)} \right|,$$

qu'on a trouvé être égal à 0,188 pour les deux isotopes dans  $\text{SbCl}_3$  [2]. Ces résultats concordent avec les analyses de la structure radiographique des cristaux correspondants.

Pour terminer, nous traiterons brièvement l'effet Zeeman des lignes de résonance quadripolaire qui fournit la possibilité de déterminer les moments dipolaires magnétiques des noyaux en question  $\mu_I$  à l'aide de ces spectres. La grandeur des séparations Zeeman des fréquences de résonance quadripolaires dépend, en plus du champ magnétique, de l'angle  $\Theta$  entre l'axe de symétrie du champ électrique et le champ magnétique statique extérieur  $H_0$ . Si  $\Theta = 0$ , la dégénérescence  $\pm$  est supprimée par  $H_0$ , en sorte que chaque terme  $\pm m_I$  est distinct de  $E_0$ . L'énergie  $E_H$  dans le champ magnétique devient :

$$E_H = E_0 \mp \frac{\mu_I}{I} H_0 |m_I|. \quad (6)$$

Chaque fréquence quadripolaire se sépare donc en un doublet Zeeman d'intervalle :

$$\Delta E_v = 2 \frac{\mu_I}{hI} H_0. \quad (7)$$

Si au contraire  $\Theta \neq 0$ , la situation est un peu plus compliquée. En admettant que la séparation Zeeman soit petite par rapport à la fréquence quadripolaire, tous les termes avec  $|m_I| > 1/2$  se comportent d'une manière analogue au cas  $\Theta = 0$ , c'est-à-dire, qu'on obtient des doublets Zeeman avec la séparation :

$$\Delta v = 2 \frac{\mu_I}{hI} H_0 \cos \Theta. \quad (7a)$$

C'est seulement pour le niveau  $m_I = \pm 1/2$  que la dégénérescence  $\pm$  n'est pas supprimée. Au contraire, les fonctions propres des deux niveaux de Zeeman sont des combinaisons linéaires des fonctions des spins correspondant à  $+1/2$  et  $-1/2$  et leur coefficients dépendent de  $\Theta$  [3].

L'énergie de ces termes Zeeman est de la forme :

$$E_H = E_0 \mp \frac{1}{2} \frac{\mu_I}{I} H_0 \sqrt{(I + 1/2)^2 \sin^2 \Theta + \cos^2 \Theta}. \quad (8)$$

On obtient donc le schéma des termes Zeeman, comme il est représenté dans la figure 6. La transition  $\pm 3/2 \leftrightarrow \pm 1/2$  a 4 composantes Zeeman, dont l'intensité et les positions dépendent de  $\Theta$ . En particulier pour  $I = 3/2$  et  $\Theta = 55^\circ$ , les composantes moyennes Zeeman  $b$  et  $c$  coïncident ; leur intensité est alors quatre fois plus grande que celle de  $a$  ou  $d$ .

En se servant d'un monocristal de  $\text{As}_2\text{O}_3$ , on peut mesurer le moment magnétique dipolaire  $\mu_I$  du noyau  $^{75}\text{As}$  [4]. Chaque molécule est orientée ici dans le réseau de telle manière que l'axe de symétrie ternaire de chaque molécule ait la direction d'une des quatre diagonales de l'espace de la cellule élémentaire cubique du cristal. Quand on dispose donc le champ magnétique extérieur

$H_0$  parallèlement à l'une des arêtes du cube élémentaire chacun des quatre gradients du champ fait le même angle de  $\Theta = 55^\circ$  avec  $H_0$ . On obtient alors le

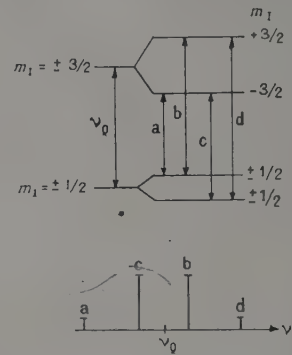


FIG. 6. — Schéma des termes Zeeman et composantes Zeeman de la transition de résonance quadripolaire  $m_I = \pm 3/2$  à  $m_I = \pm 1/2$ .

schéma de séparation qui est reproduit dans la figure 7 et qui concorde avec les considérations ci-dessus. La distance  $\Delta v$  entre les composantes  $b + c$  qui coïncident et  $a$  ou  $d$  a pour valeur :

$$\Delta v = \frac{2}{\sqrt{3}} \frac{\mu_I}{h} H_0 \cos \Theta. \quad (9)$$

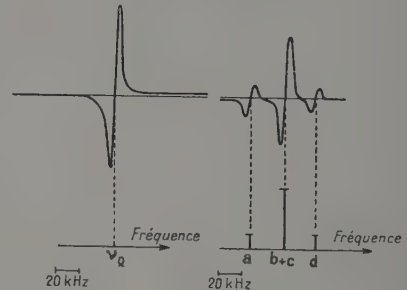


FIG. 7. — Spectre de résonance quadripolaire du noyau  $^{75}\text{As}$  dans un monocristal de  $\text{As}_2\text{O}_3$  sans et avec un faible champ magnétique extérieur.

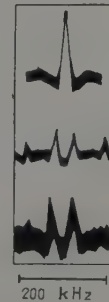


FIG. 8. — Effet Zeeman des transitions de résonance quadripolaires du noyau  $^{127}\text{I}$  pour 50 gauss : ( $I = 5/2$ ). Au-dessus : la transition  $m_I = \pm 3/2 \leftrightarrow \pm 1/2$  sans champ. Au milieu : La même pour 50 gauss. En bas : La transition  $m_I = \pm 5/2 \leftrightarrow \pm 3/2$  pour le même champ magnétique.

On trouve à l'aide de la valeur mesurée  $\Delta\nu$  pour  $H_0 = 50$  gauss une valeur  $\mu_I$  qui concorde parfaitement avec la valeur trouvée d'après les autres méthodes.

La figure 8 montre encore l'effet Zeeman du spectre de résonance quadripolaire de  $^{127}\text{I}$  [5], qui a été observé sur un monocristal de  $\text{Sn I}_4$ . Comme dans le cas de  $\text{As}_2\text{O}_3$  le champ magnétique  $H_0$  fait un angle  $\Theta = 55^\circ$  avec une arête du cube de la cellule élémentaire. Comme  $I = 5/2$  il y a ici 2 fréquences quadripolaires : celle avec  $m_I \leftrightarrow \pm 5/2 \leftrightarrow \pm 3/2$  se divise en un doublet Zeeman et celle avec  $m_I = \pm 3/2 \leftrightarrow \pm 1/2$  se divise en un quartet Zeeman. La demi-largeur de chaque composante est d'environ 10 kilohertz.

Quand  $\mu_I/I$  est très petit et que le moment quadripolaire du noyau est grand, la méthode décrite ici pour la détermination de  $\mu_I$  peut être avantageuse par rapport à la méthode de résonance magnétique du noyau. Dans ce cas le signal nucléaire dans une expérience de Bloch ou de Purcell est faible et il est si fortement élargi par le grand moment quadripolaire qu'il disparaît dans le bruit de fond. Dans un monocristal avec une valeur  $\varphi_{zz}(0)$  suffisamment grande, le signal quadripolaire est au contraire situé dans un domaine spectral qui est plus favorable pour le rapport signal bruit.

Le tableau IV donne un aperçu des résultats de la méthode tels qu'ils sont connus aujourd'hui.

TABLEAU IV  
APERÇU DES RÉSULTATS DE LA MÉTHODE

NOYAU	I	MOLÉCULE	$e Q \varphi_{zz}(0) / h$ OBSERVÉ EN MÉGAHERTZ	Q CALCULÉ EN $10^{-24} \text{ CM}^2$	BIBLIO- GRAPHIE
$^{10}\text{B}$	3	$^{11}\text{B}(\text{CH}_3)_3$	10,35	0,11	[6]
$^{11}\text{B}$	3/2	$^{11}\text{B}(\text{C}_2\text{H}_5)_3$	10,43	0,053	
$^{14}\text{N}$	1	I C N	3,40		[7]
		$\text{N}_4(\text{CH}_2)_6$	4,54		
$^{33}\text{S}$	3/2	$\text{S}_9$	45,8	0,053	[8]
$^{35}\text{Cl}$	3/2	$\text{Cl}_2$	109,0	0,076	[9]
$^{37}\text{Cl}$	3/2	$\text{CCl}_4$	81,9	0,060	
$^{63}\text{Cu}$	3/2	$\text{Cu}_2\text{O}$	53,4		[10]
$^{65}\text{Cu}$	3/2	$\text{K}[\text{Cu}(\text{C N})_2]$	65,3		
$^{75}\text{As}$	3/2	$\text{As}_4\text{O}_6$	232,5		[4]
$^{79}\text{Br}$	3/2	$\text{Br}_2$	765	0,31	[11]
$^{81}\text{Br}$	3/2	$\text{BrCH}_3$	529	0,26	
$^{121}\text{Sb}$	5/2	$\text{SbCl}_3$	489		[12]
$^{123}\text{Sb}$	7/2				
$^{127}\text{I}$	5/2	$\text{I}_2$	2 153	0,75	[5]
$^{129}\text{I}$	7/2	$\text{SnI}_4$	1 363	0,53	
$^{201}\text{Hg}$	3/2	$\text{HgCl}_2$	724	0,6	[13]
$^{209}\text{Bi}$	9/2	$\text{Bi}(\text{C}_6\text{H}_5)_3$	669		[14]

Manuscrit reçu le 19 octobre 1955.

#### BIBLIOGRAPHIE

- [1] DEHMELT (H.) et KRUGER (H.), *Naturwiss.*, 1950, **37**, III (Sc. Natur.).
- [2] DEHMELT (H.) et KRUGER (H.), *Z. Physik*, 1951, **129**, 401.
- [3] KRUGER (H.), *Z. Physik*, 1951, **130**, 371.
- [4] KRUGER (H.) et MEYER-BERKHOUT (U.), *Z. Physik*, 1952, **132**, 221.
- [5] DEHMELT (H.), *Z. Physik*, 1951, **130**, 356.
- [6] DEHMELT (H.), *Z. Physik*, 1952, **133**, 528.
- [7] WATKINS (G.) et POUND (R.), *Phys. Rev.*, 1952, **85**, 1062.
- [8] DEHMELT (H.), *Phys. Rev.*, 1953, **91**, 313.
- [9] LIVINGSTON (R.), *Phys. Rev.*, 1951, **82**, 289.
- [10] KRUGER (H.) et MEYER-BERKHOUT (U.), *Z. Physik*, 1952, **132**, 171.
- [11] DEHMELT (H.), *Z. Physik*, 1951, **130**, 480.
- [12] DEHMELT (H.) et KRUGER (H.), *Z. Physik*, 1951, **130**, 385.
- [13] DEHMELT (H.), ROBINSON (H.) et GORDY (W.), *Phys. Rev.*, 1954, **93**, 480.
- [14] ROBINSON (H.), DEHMELT (H.) et GORDY (W.), *Phys. Rev.*, 1953, **89**, 1305.



## LETTRES A LA RÉDACTION

UTILISATION DANS L'ULTRAVIOLET LOINTAIN  
D'UNE LAMPE D'ÉMISSION  
DU TYPE SCHÜLER

Par T. EL KHALAWI, A. JOHANNIN-GILLES,  
Laboratoire des Hautes Pressions, Bellevue.

Les travaux de Schüler [1] et de son école [2], [3] ... au moyen de la lampe qui porte son nom [4], [5], [6] ont apporté jusque vers 2 000 Å, des renseignements sur les processus énergétiques dans l'excitation des molécules polyatomiques qu'il serait souhaitable d'étendre dans la région de l'ultraviolet à vide où l'on peut attendre des transitions électroniques d'une énergie plus élevée. Cependant l'utilisation de la lampe de Schüler dans l'ultraviolet lointain présente certaines difficultés.

La première concerne les fenêtres d'observation : les seuls matériaux optiques transparents dans cette région du spectre sont le quartz, le corindon et les fluorures. L'emploi de fenêtres de quartz ou de corindon, matériaux résistant à la corrosion, limiterait à 1 500 Å la région de travail. Les fluorures qui permettraient de descendre à des longueurs d'onde inférieures risquent fort de ne pas résister aux attaques chimiques.

La seconde difficulté réside en l'absorption considérable de la majorité des gaz en-dessous de 2 000 Å. La présence de vapeurs de la substance étudiée au delà de l'espace de décharge risque d'entraîner une réabsorption complète de la lumière émise. Or la lampe de Schüler classique comporte à l'avant de la décharge un volume qui renferme naturellement la vapeur étudiée, laquelle protège d'ailleurs la fenêtre des dépôts que pourraient y laisser les produits de décomposition éventuellement formés par la décharge.

Pour pallier ces deux difficultés, nous avons conclu qu'il est préférable d'utiliser une lampe sans fenêtre avec une décharge passant directement devant la fente du spectrographe et un pompage continu de la lampe.

La partie arrière de la lampe est conforme au principe de celle de Schüler avec quelques modifications de détails. Dans la partie avant, la décharge passe d'abord dans un espace annulaire compris entre deux tubes concentriques à l'axe de la lampe, puis ensuite dans le tube central. Les flèches de la figure 1 indiquent le

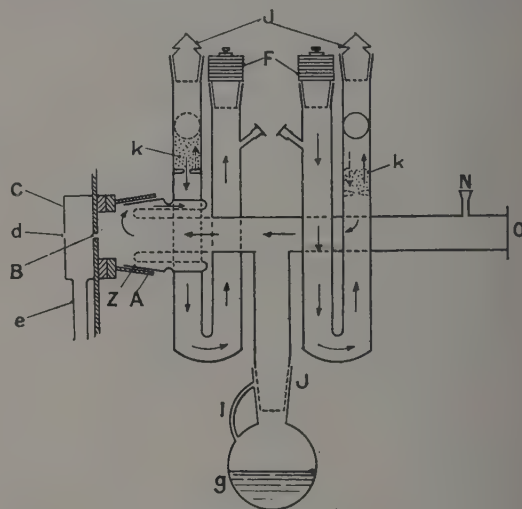
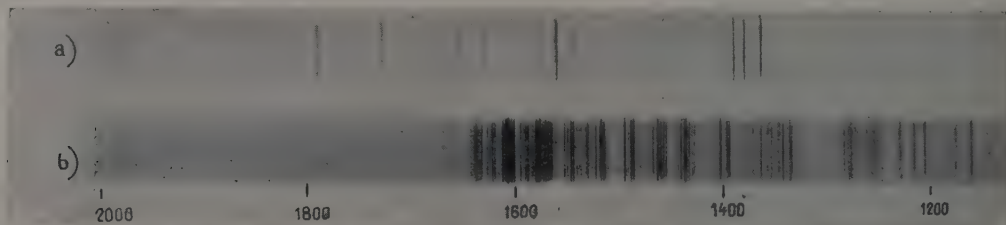


FIG. 1.

trajet de la décharge. La source est fixée par un rodage conique A sur la pièce du spectrographe à vide qui porte la fente B. La vapeur étudiée est pompée directement à travers la fente du spectrographe. A l'intérieur de ce dernier, une boîte métallique plate C vient limiter la diffusion de la vapeur organique dans le spectrographe, ce qui minimise, d'une part, le trajet optique effectué dans l'appareil à travers une vapeur qui peut être absorbante et, d'autre part, les risques

FIG. 2. — a) Spectre de  $\text{CCl}_4$  (avec impuretés CO) ; b) Spectre de  $\text{P}_2$ .

d'attaque du réseau par les vapeurs organiques. Cette pièce C est percée dans l'axe de l'appareil, d'une ouverture D de dimensions strictement calculées pour permettre le passage du faisceau lumineux et qui peut être fermée par une fenêtre de collodion. Elle est reliée à un système de pompage.

En sus de la modification de la forme de la décharge, notre montage diffère de la lampe de Schüler par un certain nombre de points. Le refroidissement des électrodes F, F', se fait par air comprimé et non par eau, avantage non négligeable puisqu'il existe une différence de potentiel de plusieurs milliers de volts entre les électrodes et par rapport à la terre. Les électrodes d'aluminium sont surmontées d'un système d'ailettes qui offrent une grande surface au refroidissement. L'étanchéité des rodages de fixation est assurée par un joint de caoutchouc torique encastré dans une gorge. La partie du tube central qui se trouve à l'intérieur du rodage est refroidie également par air comprimé en Z.

Le montage thermostatique et la plaque de verre fritté de la lampe de Schüler originale, qui permettaient de régler, compte tenu de la perte de charge fixe du verre fritté, la pression de vapeur dans la lampe, ont été remplacés par un dispositif de réglage direct du débit gazeux, à pression amont constante. Le réservoir G qui contient la substance à étudier communique avec la lampe par la canalisation I, à la quelle correspond en J une ouverture en forme de V qui permet, par rotation de G, un réglage fin du débit gazeux, le liquide étant généralement à la température ambiante.

Les diffusions du gaz d'entretien vers le tube d'observation et de la substance à étudier vers les pièges à air liquide sont réduites par des bouchons de laine de silice K. La disposition en S du piège à air liquide est telle que le gaz d'entretien plus léger se trouve au-dessus du bouchon de laine de silice. Le ralentissement de la diffusion offre en plus l'avantage d'une plus grande uniformité de la pression dans le tube d'observation, ce qui est d'autant plus utile que la substance est pompée d'une façon continue à travers la fente. Un vacumètre thermique permet une mesure relative de la pression.

Les gaz d'entretien utilisés, au cours des premiers essais, ont été l'hélium, l'argon et l'hydrogène. La purification de l'hydrogène est effectuée par un osmomètre à palladium.

La figure 2 donne un exemple des spectres. Une discussion des quelques résultats obtenus sera publiée ailleurs.

Manuscrit reçu le 20 février 1956.

## BIBLIOGRAPHIE

- [1] SCHÜLER (H.), *J. Physique Rad.*, 1954, **15**, 524.
- [2] LEACH (S.), *J. Chim. Phys.*, 1954, **51**, 557.
- [3] BENOIST (R.), *Ann. Physique*, 1955, **10**, 363.
- [4] SCHÜLER (H.), GOLLNOW (H.), WOELDIKE (A.), *Physik Z.*, 1940, **41**, 381.
- [5] SCHÜLER (H.), WOELDIKE (A.), *Physik Z.*, 1941, **42**, 390.
- [6] SCHÜLER (H.), *Spectrochimica Acta*, 1950, **4**, 85.

## SUR LE RAYONNEMENT $\gamma$ DU $^{25}\text{Na}$

Par M. E. NAHMIA et M<sup>lle</sup> T. YUASA,

Laboratoire de Chimie et Physique Nucléaires  
du Collège de France.

Dans notre note [1] concernant l'énergie totale de désintégration du  $^{25}\text{Na}$  en liaison avec le nombre magique 14, nous avons signalé la complexité du spectre  $\beta$ , en accord avec les résultats de Bleuler et Zunti [2], et la présence d'une raie  $\gamma$  de  $625 \pm 25$  keV.

Simultanément Maeder et Staehelin [3] publiaient les résultats préliminaires et ensuite les détails de leurs recherches sur ce même nucléide obtenu par la réaction  $^{26}\text{Mg}(\gamma, p)^{25}\text{Na}$ . L'énergie totale de désintégration trouvée par ces auteurs est de  $4,0 \pm 0,2$  MeV, en assez bon accord avec notre valeur  $3,65 \pm 0,25$  MeV, ce qui confirme qu'il n'existe pas pour ce nucléide à 14 neutrons d'anomalie [4] « déficitaire » du même ordre de grandeur que celles des nucléides  $^{28}\text{Al}$  et  $^{29}\text{Al}$ . Ces chercheurs ont également étudié le rayonnement  $\gamma$

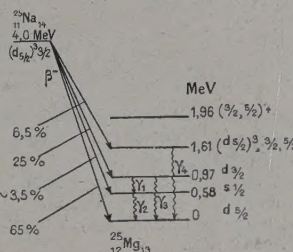


FIG. 1. — Schéma de désintégration du  $^{25}\text{Na}$  d'après D. Maeder et P. Staehelin.

du  $^{25}\text{Na}$  et ils trouvent des raies à  $380 \pm 10$  keV ;  $576 \pm 10$  keV ;  $978 \pm 15$  keV et 1,6 MeV, avec les rapports d'intensité : 270 : 300 : 400 : 130. Ils ont proposé le schéma de désintégration du  $^{25}\text{Na}$  de la figure 1.

D'autre part, Iwerson et Koski [5] ont étudié le  $^{25}\text{Na}$  obtenu par la réaction  $^{26}\text{Mg}(n, p)^{25}\text{Na}$ . Ils trouvent trois raies à  $410 \pm 10$  keV,  $590 \pm 10$  et  $980 \pm 10$  keV et une raie problématique à 460 keV.

Bien que notre but soit l'étude des anomalies liées aux noyaux magiques, nous avons décidé d'examiner en détail les raies  $\gamma$  du  $^{25}\text{Na}$ , car nous craignons que les recherches citées plus haut aient été perturbées par la présence des  $\gamma$  de  $^{27}\text{Mg}$ , de période de 9,5 min, et toujours présent lors de l'irradiation de Mg par des  $\gamma$ , des neutrons ou des deutons. Il y a toujours assez de neutrons autour des cibles des bétatrons et des cyclotrons pour obtenir  $^{27}\text{Mg}$  par  $^{26}\text{Mg}(n, \gamma)$ .

Nous avons irradié un bloc de Mg, de pureté chimique 99,995 %, pendant 4 min par les neutrons rapides produits par Be ( $d, n$ ) B, au cyclotron du Laboratoire de Physique et Chimie Nucléaires du Collège de France.

Vingt secondes après la fin de l'irradiation, le bloc de Mg était placé devant un scintillateur NaI (TI) couplé à un photomultiplicateur EMI 6260 et un sélecteur à 50 canaux. Les numérateurs des 50 canaux ont été photographiés toutes les 20 sec (temps de pose 1/500<sup>e</sup> de sec), jusqu'à 5 fois la période de 1 min



du  $^{25}\text{Na}$ , puis toutes les minutes jusqu'à 28 minutes après la fin de l'irradiation.

Nous avons limité le domaine étudié entre 270 keV et 1,6 MeV. La figure 2 montre quelques courbes intégrées de ces mesures. Parmi les pics observés, ceux à  $370 \pm 10$  keV et à  $580 \pm 10$  keV décroissent sans

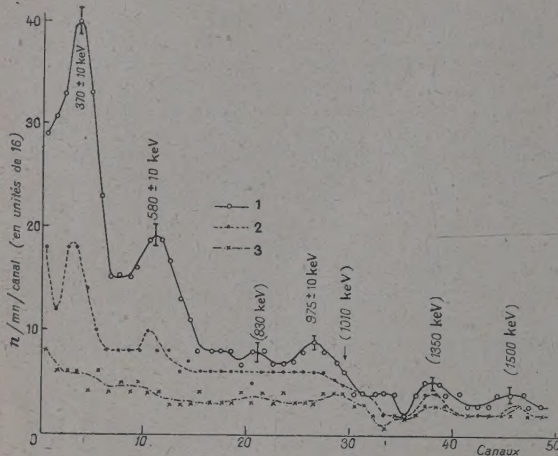


FIG. 2. — Décroissance du rayonnement du  $^{25}\text{Na}$ .

- 1) Somme des mesures entre  $t = 20$  sec à 80 sec depuis la fin de l'irradiation.
- 2) Somme des mesures entre  $t = 1$  min 55 sec à 2 min 55 sec depuis la fin de l'irradiation.
- 3) Mesure entre  $t = 21$  min 55 sec à 22 min 55 sec depuis la fin de l'irradiation.

ambiguïté avec une période de  $60 \text{ sec} \pm 2 \text{ sec}$ . Par contre la raie à 975 keV a une période moins nette, tout au moins au début de la décroissance. Les intensités de ces trois raies seraient environ : 0,8 ; 1 ; 0,74, compte tenu des efficacités du scintillateur pour ces énergies.

Nous n'avons pas observé de raies ni à 460 KeV, ni à 1,6 MeV. Cette dernière peut nous avoir échappé à cause de l'efficacité du scintillateur dans cette région et de la faible intensité de notre source. Toutefois la raie à 1,35 MeV et qui décroît avec une période de 1 minute (fig. 2) pourrait être en partie due à la distribution Compton de la raie de 1,6 MeV dont le maximum serait à 1,39 MeV. Cette raie pourrait également être alimentée par une transition entre un état excité de  $^{25}\text{Mg}$  à 1,96 MeV [6] et l'état à 0,58 MeV. Il s'ensuivrait que la désintégration  $\beta$  du  $^{25}\text{Na}$  aurait une cinquième composante de 2 MeV environ non encore identifiée.

La raie de 460 keV signalée par Iverson et Koski [5] pourrait être due à  $^{23}\text{Ne}$  de 40 sec de période formé suivant le  $^{26}\text{Mg} (n, \alpha) ^{23}\text{Na}$  (1).

Les raies à 830 keV, 1,01 MeV, et 1,5 MeV décroissent avec une période égale ou supérieure à 10 min. Les deux premières peuvent être attribuées au  $^{27}\text{Mg}$  et la troisième à  $^{24}\text{Na}$ , formés respectivement suivant :  $^{26}\text{Mg} (n, \alpha) ^{27}\text{Mg}$ , et  $^{24}\text{Mg} (n, p) ^{24}\text{Na}$ .

Pour conclure nous confirmons la présence de 3 raies  $\gamma$  du  $^{25}\text{Na}$  à  $370 \pm 10$  keV, à  $580 \pm 10$  keV et à  $975 \pm 10$  keV, avec les intensités : 0,8, 1 et 0,74.

(1) Communication privée de M. MAEDER.

La forte intensité de la troisième raie signalée par Maeder et Staehelin [3] pourrait en partie être due à la contribution de la raie de 1,01 MeV de  $^{27}\text{Mg}$  très probablement produite par  $^{26}\text{Mg} (n, \gamma)$  près de la cible du bétatron.

Manuscrit reçu le 20 février 1956.

## BIBLIOGRAPHIE

- [1] NAHMIA (M. E.) et YUASA (T.), *C. R. Acad. Sc.*, 1954, **239**, 47.
- [2] BLEULER (E.) et ZUNTI (W.), *Helv. Phys. Acta*, 1947, **20**, 195.
- [3] MAEDER (D.) et STAHELIN (P.), *Helv. Phys. Acta*, 1954, **27**, 169 et 1955, **28**, 193.
- [4] NAHMIA (M. E.), *C. R. Acad. Sc.*, 1954, **238**, 1875.
- [5] IVERSON (J. E.) et KOSKI (W. S.), *Phys. Rev.*, 1955, **98**, 1307.
- [6] GOVE (H. E.), LITHERLAND (A. E.), PAUL (E. B.) et BARTHOLOMEW (G. A.), *Bull. Amer. Phys. Soc.*, 1956, **1**, 1, 29. Series II.

## FONCTIONS PROPRES ET PROPRIÉTÉS DES ÉTATS PATHOLOGIQUES EN THÉORIE DES CHAMPS

Par M. E. ARNOUS,

Institut Henri-Poincaré, Paris.

L'existence d'états liés pathologiques a été mise en évidence récemment [1] sur des modèles simples de champs en interaction avec des électrons et des nucléons représentés pas des sources étendues. Les propriétés de ces états sont reflétées par les fonctions propres de l'hamiltonien.

Pour le modèle de Wentzel [2], par exemple, l'hamiltonien contient un terme

$$H_{\alpha} = \frac{1}{2} (P_{\alpha}^2 - \alpha^2 Q_{\alpha}^2),$$

où  $P$  et  $Q$  sont des opérateurs hermitiens et où  $\alpha^2 = \alpha^2 - \mu^2$  est positif ( $\alpha > \mu$ ). Posons  $P = -i \partial / \partial Q$ . Nous trouvons pour fonctions propres de  $H_{\alpha}$ , les fonctions de Weber [3] :

$$\begin{aligned} H_{\alpha} A_{\nu}(Q) &= \nu \alpha A_{\nu}(Q) \\ A_{\nu} &= D_{-\left[\frac{1}{2} + i\nu\right]} \left\{ (1 + i) Q \alpha^{1/2} \right\} \\ &= \frac{2^{\frac{1}{4} - i\nu}}{\Gamma\left(\frac{1}{4} + i\nu\right)} \int_1^{\infty} \frac{d\lambda e^{iQ^2 \alpha \lambda / 2}}{(\lambda + 1)^{\frac{3}{4} + i\nu} (\lambda - 1)^{\frac{3}{4} - i\nu}}. \end{aligned}$$

Ces fonctions ont les propriétés suivantes :

$$A_{\nu}(Q) \approx e^{-iQ^2 \alpha / 2} Q^{-\frac{1}{2} + i\nu} \text{ si } Q \rightarrow \infty \quad (1)$$

$$P A_{\nu}(Q) = \frac{i-1}{2} \left( \frac{1}{2} + i\nu \right) \alpha^{1/2} A_{\nu-i} + \frac{i-1}{2} \alpha^{1/2} A_{\nu+i} \quad (2)$$

$$\alpha Q A_{\nu}(Q) = \frac{i-1}{2} \left( \frac{1}{2} + i\nu \right) \alpha^{1/2} A_{\nu-i} - \frac{i-1}{2} \alpha^{1/2} A_{\nu+i}. \quad (3)$$







mesure où  $\mu$ ,  $\kappa_1$  et  $\frac{1}{\rho}$  restent sensiblement constants) d'augmenter le retard de phase de la densité par rapport à la pression. Or c'est précisément un tel retard de phase, localisé dans la région critique, que l'on associe au temps de relaxation caractéristique des changements de configuration lors des variations rapides de pression dues à l'onde sonore [4]. On peut ainsi penser que l'existence de ces phénomènes de relaxation structurelle limités à la région critique est en rapport, par l'intermédiaire des valeurs de  $\kappa_2$  avec le désaccord qui se manifeste dans cette région entre les valeurs expérimentales de la vitesse et  $\bar{V}_0$ . De même l'équation (II) laisserait prévoir pour l'absorption des valeurs plus élevées dans la région critique, également dues à un comportement singulier de  $\kappa_2$  dans cette région.

Remarquons enfin que les conclusions précédentes,

soumises à un très grand nombre d'hypothèses, ne pourront être vraiment validées que lorsqu'on possèdera des résultats expérimentaux en nombre important.

Manuscrit reçu le 10 janvier 1956.

## BIBLIOGRAPHIE

- [1] NOURY (J.), *Thèse*, Paris 1956, à paraître au Journal des Recherches du C. N. R. S.
- [2] HERGET (C. M.), *J. Chem. Phys.*, 1940, 8, 537.
- [3] TRUESDELL (C.), *Proc. Roy. Soc.*, 1954, A226, 59.
- [4] SCHNEIDER (W. G.), Colloque sur les changements de Phase, Paris 1952, p. 69.
- CHYNOWETH (A. G.) et SCHNEIDER (W. G.), *J. Chem. Phys.*, 1952, 20, 1777.
- [5] TISZA (L.), *Phys. Rev.*, 1942, 61, 531.

## REVUE DES LIVRES

ANDREW (E. R.), **Résonance magnétique nucléaire**. (Nuclear Magnetic Resonance.) 1 vol., 14 × 21,5 cm, 266 pages, Cambridge University Press, 1955, 35 s.

Cet ouvrage est, avec celui de P. Grivet, le premier exposé d'ensemble sur la résonance magnétique nucléaire. Après une courte introduction (chapitre 1) le chapitre 2 est consacré à un exposé élémentaire de la théorie de la résonance magnétique.

Au chapitre 3 l'auteur analyse clairement et complètement les diverses méthodes expérimentales (absorption, induction nucléaire, méthodes d'impulsion, méthodes optiques...).

Puis viennent les applications : en premier lieu la détermination des propriétés nucléaires (moments magnétiques, spins, moments quadrupolaires...) et la mesure des champs magnétiques (chapitre 4).

Les chapitres 5, 6 et 7 sont consacrés respectivement à la résonance magnétique des liquides (et gaz), des solides non métalliques et des métaux.

Dans ces trois chapitres les phénomènes sont étudiés en détail tant au point de vue théorique qu'au point de vue expérimental. Les divers aspects sont mentionnés, des expériences particulières décrites (températures de spin négatives, effet Oberhauser).

Le chapitre 8 est consacré aux effets quadrupolaires (relaxation dans les solides) ; le principe de la résonance électrique quadrupolaire est indiqué.

Six appendices fort utiles terminent le livre (moments nucléaires, théorie de la relaxation dans les liquides, système de deux spins...).

Une bibliographie complète (à jour au milieu de 1954) valorise encore l'excellent exposé du professeur Andrew.

J. UEBERSFELD.

RICHTMYER (F. K.), KENNARD (E. M.), LAURISEN (T.), **Introduction to modern physics**. (1 vol. relié, 15 × 23 cm, 666 pages, Mac-Graw Hill, New-York, 1955, prix \$ 8.50, 5<sup>e</sup> édition.)

Il s'agit d'un ouvrage classique, dont la première édition remonte à 1928. Cependant, cette 5<sup>e</sup> édition mérite une analyse spéciale. Les 430 premières pages (historique, relativité, électron, quanta, spectroscopie, mécanique ondu-

laire, structure atomique, rayons X) ne contiennent que peu d'additions (quelques additions sur les calculs de perturbation en mécanique quantique et sur les applications à la théorie de la matière en masse). Ce sont les 200 dernières qui méritent le plus d'attention : Le chapitre X est consacré à la physique nucléaire. L'exposé est excellent ; très clair et suffisamment explicite. Des questions délicates comme la découverte du neutron sont rendues faciles.

Les propriétés énergétiques des nucléons dans le noyau sont admirablement exposées, et le double aspect des propriétés théoriques du noyau (gouttelette liquide pour la fission, et modèle par couches successives d'énergie, comme en mécanique quantique ordinaire, pour les énergies de liaison) est bien mis en évidence.

Le chapitre XI (rayons cosmiques et particules élémentaires) n'est pas moins réussi. On lit sans peine l'enchevêtrement des propriétés des rayons cosmiques, et la description des différents types de mésons, questions d'une lecture parfois ardue. Félicitons donc M. Lauritsen, auteur de la révision de ces 2 chapitres.

J. WINTER.

REIMANN (A. L.), **Technique du vide**. (1 vol. relié, 15,5 × 24,5 cm, XIV + 399 pages, Dunod, Paris, 1956, 3 600 F.)

Il s'agit du livre de Reimann traduit et augmenté par Bonifas. L'ouvrage du Professeur Reimann a paru en 1952. Il a été conçu par un praticien qui a cherché à faire comprendre les phénomènes sans en faire de démonstration ; un examen détaillé des phénomènes physico-chimiques qui se présentent dans cette technique a été l'objet d'un soin particulier.

Dans les 13 chapitres dont il est composé l'ouvrage en comporte plusieurs sur le travail du verre, les soudures verre-métal. Le traducteur, dans de nombreuses additions, décrit les propriétés des verres et des appareils français concurremment avec ceux qui sont utilisés aux États-Unis et en Angleterre.

Une bibliographie importante adjointe à chacun des chapitres permet de préciser de nombreux points.

G. DUPUY.